

(19) 日本国特許庁 (J P)

## (12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平10-95972

(43) 公開日 平成10年(1998) 4月14日

(51) Int.Cl.<sup>8</sup>

識別記号

F I

C 0 9 K 11/06

C 0 9 K 11/06

Z

H 0 5 B 33/14

H 0 5 B 33/14

審査請求 未請求 請求項の数 4 O L (全 23 頁)

(21) 出願番号 特願平9-196007

(22) 出願日 平成9年(1997) 7月22日

(31) 優先権主張番号 特願平8-204613

(32) 優先日 平8(1996) 8月2日

(33) 優先権主張国 日本 (J P)

(71) 出願人 000003126

三井東圧化学株式会社

東京都千代田区霞が関三丁目2番5号

(72) 発明者 中塚 正勝

神奈川県横浜市栄区笠間町1190番地 三井

東圧化学株式会社内

(72) 発明者 北本 典子

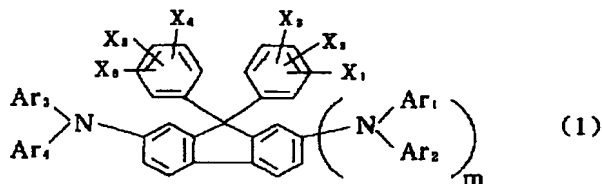
神奈川県横浜市栄区笠間町1190番地 三井

東圧化学株式会社内

(54) 【発明の名称】 有機電界発光素子

(57) 【要約】

【解決手段】 一对の電極間に、一般式(1)で表される化合物を少なくとも1種含有する層を少なくとも一層挟持してなる有機電界発光素子。



(式中、Ar<sub>1</sub> ~ Ar<sub>4</sub> は置換または未置換のアリール基を表し、X<sub>1</sub> ~ X<sub>6</sub> は水素原子、ハロゲン原子、直鎖、分岐または環状のアルキル基、直鎖、分岐または環状のアルコキシ基、あるいは置換または未置換のアリール基を表す)

【効果】 発光寿命が長く、耐久性に優れた有機電界発光素子を提供する。

BEST AVAILABLE COPY

(2)

1

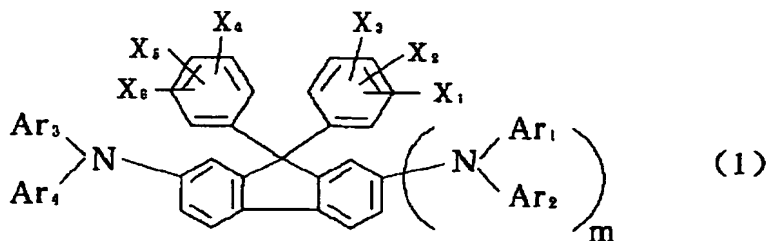
2

## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 一对の電極間に、一般式(1)(化1)で表される化合物を少なくとも1種含有する層を、少な\*

\*くとも一層挟持してなる有機電界発光素子。

【化1】



(式中、Ar<sub>1</sub>～Ar<sub>4</sub>は置換または未置換のアリール基を表し、X<sub>1</sub>～X<sub>6</sub>は水素原子、ハロゲン原子、直鎖、分岐または環状のアルキル基、直鎖、分岐または環状のアルコキシ基、あるいは置換または未置換のアリール基を表し、mは0または1を表す)

【請求項2】 一般式(1)で表される化合物を含有する層が、正孔注入輸送層である請求項1記載の有機電界発光素子。

【請求項3】 一对の電極間に、さらに、発光層を有する請求項1または2記載の有機電界発光素子。

【請求項4】 一对の電極間に、さらに、電子注入輸送層を有する請求項1～3のいずれかに記載の有機電界発光素子。

## 【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、有機電界発光素子に関する。

【0002】

【従来の技術】従来、無機電界発光素子は、例えば、バックライトなどのパネル型光源として使用されてきたが、該発光素子を駆動させるには、交流の高電圧が必要である。最近になり、発光材料に有機材料を用いた有機電界発光素子(有機エレクトロルミネッセンス素子:有機EL素子)が開発された[Appl. Phys. Lett., 51、913 (1987)]。有機電界発光素子は、蛍光性有機化合物を含む薄膜を、陽極と陰極間に挟持された構造を有し、該薄膜に電子および正孔(ホール)を注入して、再結合させることにより励起子(エキシトン)を生成させ、この励起子が失活する際に放出される光を利用して発光する素子である。有機電界発光素子は、数V～数十V程度の直流の低電圧で、発光が可能であり、また蛍光性有機化合物の種類を選択することにより、種々の色(例えば、赤色、青色、緑色)の発光が可能である。このような特徴を有する有機電界発光素子は、種々の発光素子、

表示素子等への応用が期待されている。しかしながら、一般に、有機電界発光素子は、発光寿命が短く、耐久性に乏しいなどの難点がある。

【0003】正孔注入輸送材料として、1, 1-ビス[4'-[N, N-ジ(4"-メチルフェニル)アミノ]フェニル]シクロヘキサンを用いることが提案されている[Appl. Phys. Lett., 51、913 (1987)]。また、正孔注入輸送材料として、4, 4'-ビス[N-フェニル-N-(3"-メチルフェニル)アミノ]ビフェニルを用いることが提案されている[Jpn. J. Appl. Phys., 27、L269 (1988)]。しかしながら、これらの発光素子も発光寿命が短く、耐久性に乏しいなどの難点がある。現在では、一層改良された有機電界発光素子が望まれている。

【0004】

【発明が解決しようとする課題】本発明の課題は、発光寿命の改良された有機電界発光素子を提供することである。

【0005】

【課題を解決するための手段】本発明者等は、有機電界発光素子に関して鋭意検討した結果、本発明を完成するに至った。すなわち、本発明は、

①一对の電極間に、一般式(1)(化2)で表される化合物を少なくとも1種含有する層を、少なくとも一層挟持してなる有機電界発光素子、

②一般式(1)で表される化合物を含有する層が、正孔注入輸送層である①記載の有機電界発光素子、

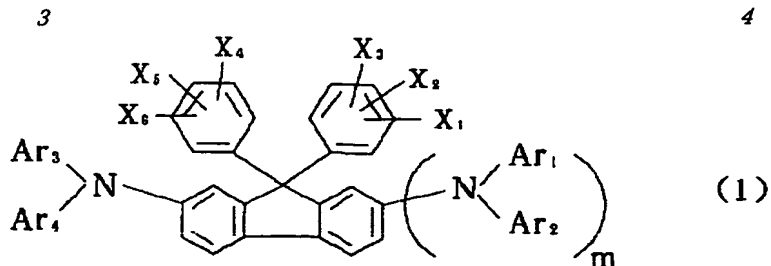
③一对の電極間に、さらに、発光層を有する前記①または②に記載の有機電界発光素子、

④一对の電極間に、さらに、電子注入輸送層を有する前記①～③のいずれかに記載の有機電界発光素子、に関するものである。

【0006】

【化2】

(3)



(式中、 $Ar_1 \sim Ar_4$  は置換または未置換のアリール基を表し、 $X_1 \sim X_6$  は水素原子、ハロゲン原子、直鎖、分岐または環状のアルキル基、直鎖、分岐または環状のアルコキシ基、あるいは置換または未置換のアリール基を表し、 $m$ は0または1を表す)

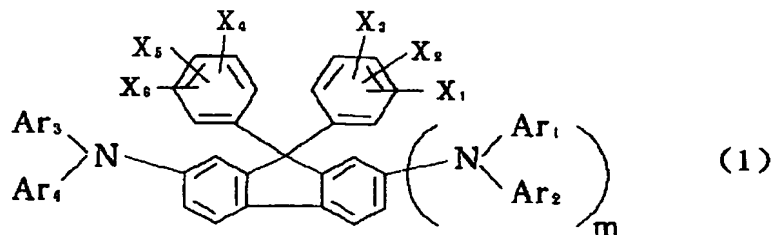
【0007】

【発明の実施の形態】以下、本発明に関して詳細に説明\*

\*する。本発明の有機電界発光素子は、一对の電極間に、一般式(1)(化3)で表される化合物を少なくとも1種含有する層を、少なくとも一層挟持してなるものである。

【0008】

【化3】



(式中、 $Ar_1 \sim Ar_4$  は置換または未置換のアリール基を表し、 $X_1 \sim X_6$  は水素原子、ハロゲン原子、直鎖、分岐または環状のアルキル基、直鎖、分岐または環状のアルコキシ基、あるいは置換または未置換のアリール基を表し、 $m$ は0または1を表す)

【0009】一般式(1)で表される化合物において、 $Ar_1 \sim Ar_4$  は置換または未置換のアリール基を表す。尚、アリール基とは、例えば、フェニル基、ナフチル基などの炭素環式芳香族基、例えば、フリル基、チエニル基、ピリジル基などの複素環式芳香族基を表す。 $Ar_1 \sim Ar_4$  は、好ましくは、未置換、もしくは、置換基として、例えば、ハロゲン原子、炭素数1~10のアルキル基、炭素数1~10のアルコキシ基、あるいは炭素数6~10のアリール基で単置換または多置換されていてもよい総炭素数6~20の炭素環式芳香族基または総炭素数4~20の複素環式芳香族基であり、より好ましくは、未置換、もしくは、ハロゲン原子、炭素数1~6のアルキル基、炭素数1~6のアルコキシ基、あるいは炭素数6~10のアリール基で単置換または多置換されていてもよい総炭素数6~20の炭素環式芳香族基であり、特に好ましくは、未置換、もしくは、ハロゲン原子、炭素数1~6のアルキル基、炭素数1~6のアルコキシ基、あるいは炭素数6~10のアリール基で単置換または多置換されていてもよい総炭素数6~20のフェニル基または総炭素数10~20のナフチル基である。

【0010】 $Ar_1 \sim Ar_4$  の具体例としては、例えば、フェニル基、1-ナフチル基、2-ナフチル基、2-アントリル基、9-アントリル基、4-キノリル基、4-ピリジル基、3-ピリジル基、2-ピリジル基、3

フリル基、2-フリル基、3-チエニル基、2-チエニル基、2-オキサゾリル基、2-チアゾリル基、2-ベンゾオキサゾリル基、2-ベンゾチアゾリル基、2-ベンゾイミダゾリル基、4-メチルフェニル基、3-メチルフェニル基、2-メチルフェニル基、4-エチルフェニル基、3-エチルフェニル基、2-エチルフェニル基、4-n-プロピルフェニル基、4-イソプロピルフェニル基、2-イソプロピルフェニル基、4-n-ブチルフェニル基、4-イソブチルフェニル基、4-sec-ブチルフェニル基、2-sec-ブチルフェニル基、4-tert-ブチルフェニル基、3-tert-ブチルフェニル基、2-tert-ブチルフェニル基、4-n-ペンチルフェニル基、4-イソペンチルフェニル基、2-ネオペンチルフェニル基、4-tert-ペンチルフェニル基、4-n-ヘキシルフェニル基、4-(2'-エチルブチル)フェニル基、4-n-ヘプチルフェニル基、4-n-オクチルフェニル基、4-(2'-エチルヘキシル)フェニル基、4-tert-オクチルフェニル基、4-n-デシルフェニル基、4-シクロペンチルフェニル基、4-シクロヘキシルフェニル基、4-(4'-メチルシクロヘキシル)フェニル基、4-(4'-tert-ブチルシクロヘキシル)フェニル基、3-シクロヘキシルフェニル基、2-シクロヘキシルフェニル基、4-エチル-1-ナフチル基、6-n-ブチル-2-ナフチル基、2,4-ジメチルフェニル基、2,5-ジメチルフェニル基、3,4-ジメチルフェニル基、3,5-ジメチルフェニル基、2,6-ジメチルフェニル基、2,4-ジエチルフェニル基、2,3,5-トリメチルフェニル基、2,3,6-トリメチルフェニル基、3,4,5-トリメチル

(4)

5

ルフェニル基、2、6-ジエチルフェニル基、2、5-ジイソプロピルフェニル基、2、6-ジイソブチルフェニル基、2、4-ジ-tert-ブチルフェニル基、2、5-ジ-tert-ブチルフェニル基、4、6-ジ-tert-ブチル-2-メチルフェニル基、5-tert-ブチル-2-メチルフェニル基、4-tert-ブチル-2、6-ジメチルフェニル基、

【0011】4-メトキシフェニル基、3-メトキシフェニル基、2-メトキシフェニル基、4-エトキシフェニル基、3-エトキシフェニル基、2-エトキシフェニル基、4-n-プロポキシフェニル基、3-n-プロポキシフェニル基、4-イソプロポキシフェニル基、2-イソプロポキシフェニル基、4-n-ブトキシフェニル基、4-イソブトキシフェニル基、2-sec-ブトキシフェニル基、4-n-ペンチルオキシフェニル基、4-イソペンチルオキシフェニル基、2-イソペンチルオキシフェニル基、4-ネオペンチルオキシフェニル基、2-ネオペンチルオキシフェニル基、4-n-ヘキシルオキシフェニル基、2-(2'-エチルブチル)オキシフェニル基、4-n-オクチルオキシフェニル基、4-n-デシルオキシフェニル基、4-シクロヘキシルオキシフェニル基、2-シクロヘキシルオキシフェニル基、2-メトキシ-1-ナフチル基、4-メトキシ-1-ナフチル基、4-n-ブトキシ-1-ナフチル基、5-エトキシ-1-ナフチル基、6-エトキシ-2-ナフチル基、6-n-ブトキシ-2-ナフチル基、6-n-ヘキシルオキシ-2-ナフチル基、7-メトキシ-2-ナフチル基、7-n-ブトキシ-2-ナフチル基、2-メチル-4-メトキシフェニル基、2-メチル-5-メトキシフェニル基、3-メチル-5-メトキシフェニル基、3-エチル-5-メトキシフェニル基、2-メトキシ-4-メチルフェニル基、3-メトキシ-4-メチルフェニル基、2、4-ジメトキシフェニル基、2、5-ジメトキシフェニル基、2、6-ジメトキシフェニル基、3、4-ジメトキシフェニル基、3、5-ジメトキシフェニル基、3、5-ジエトキシフェニル基、3、5-ジ-n-ブトキシフェニル基、2-メトキシ-4-エトキシフェニル基、2-メトキシ-6-エトキシフェニル基、3、4、5-トリメトキシフェニル基、4-フェニルフェニル基、3-フェニルフェニル基、2-フェニルフェニル基、4-(4'-メチルフェニル)フェニル基、4-(3'-メチルフェニル)フェニル基、4-(4'-メトキシフェニル)フェニル基、4-(4'-n-ブトキシフェニル)フェニル基、2-(2'-メトキシフェニル)フェニル基、4-(4'-クロロフェニル)フェニル基、3-メチル-4-フェニルフェニル基、3-メトキシ-4-フェニルフェニル基、

【0012】4-フルオロフェニル基、3-フルオロフェニル基、2-フルオロフェニル基、4-クロロフェニル基、3-クロロフェニル基、2-クロロフェニル基、

6

4-ブロモフェニル基、2-ブロモフェニル基、4-クロロ-1-ナフチル基、4-クロロ-2-ナフチル基、6-ブロモ-2-ナフチル基、2、3-ジフルオロフェニル基、2、4-ジフルオロフェニル基、2、5-ジフルオロフェニル基、2、6-ジフルオロフェニル基、3、4-ジフルオロフェニル基、3、5-ジフルオロフェニル基、2、3-ジクロロフェニル基、2、4-ジクロロフェニル基、2、5-ジクロロフェニル基、3、4-ジクロロフェニル基、3、5-ジクロロフェニル基、2、5-ジブロモフェニル基、2、4、6-トリクロロフェニル基、2、4-ジクロロ-1-ナフチル基、1、6-ジクロロ-2-ナフチル基、2-フルオロ-4-メチルフェニル基、2-フルオロ-5-メチルフェニル基、3-フルオロ-2-メチルフェニル基、3-フルオロ-4-メチルフェニル基、2-メチル-4-フルオロフェニル基、2-メチル-5-フルオロフェニル基、3-メチル-4-フルオロフェニル基、2-クロロ-4-メチルフェニル基、2-クロロ-5-メチルフェニル基、2-クロロ-6-メチルフェニル基、2-メチル-3-クロロフェニル基、2-メチル-4-クロロフェニル基、3-メチル-4-クロロフェニル基、2-クロロ-4、6-ジメチルフェニル基、2-メトキシ-4-フルオロフェニル基、2-フルオロ-4-メトキシフェニル基、2-フルオロ-4-エトキシフェニル基、2-フルオロ-6-メトキシフェニル基、3-フルオロ-4-エトキシフェニル基、3-クロロ-4-メトキシフェニル基、2-メトキシ-5-クロロフェニル基、3-メトキシ-6-クロロフェニル基、5-クロロ-2、4-ジメトキシフェニル基などを挙げることができるが、これらに限定されるものではない。

【0013】一般式(1)で表される化合物において、 $X_1 \sim X_6$  は水素原子、ハロゲン原子、直鎖、分岐または環状のアルキル基、直鎖、分岐または環状のアルコキシ基、あるいは置換または未置換のアリール基を表し、好ましくは、水素原子、ハロゲン原子(例えば、フッ素原子、塩素原子、臭素原子)、炭素数1~10の直鎖、分岐または環状のアルキル基(例えば、メチル基、エチル基、n-プロピル基、イソプロピル基、n-ブチル基、イソブチル基、tert-ブチル基、n-ペンチル基、イソペンチル基、ネオペンチル基、tert-ペンチル基、n-ヘキシル基、シクロヘキシル基、n-ヘプチル基、シクロヘキシルメチル基、n-オクチル基、tert-オクチル基、2-エチルヘキシル基、n-ノニル基、n-デシル基など)、炭素数1~10の直鎖、分岐または環状のアルコキシ基(例えば、メトキシ基、エトキシ基、n-プロポキシ基、イソプロポキシ基、n-ブトキシ基、イソブトキシ基、sec-ブトキシ基、n-ペンチルオキシ基、ネオペンチルオキシ基、n-ヘキシルオキシ基、シクロヘキシルオキシ基、n-ヘプチルオキシ基、n-オクチルオキシ基、2-エチルヘキシルオキシ基、n-

(5)

7

ノニルオキシ基、*n*-デシルオキシ基など)、あるいは炭素数6~10の置換または未置換のアリール基(例えば、フェニル基、2-メチルフェニル基、3-メチルフェニル基、4-メチルフェニル基、4-エチルフェニル基、4-*n*-プロピルフェニル基、4-*tert*-ブチルフェニル基、2-メトキシフェニル基、4-メトキシフェニル基、3-エトキシフェニル基、3-フルオロフェニル基、3-クロロフェニル基、4-クロロフェニル基、1-ナフチル基、2-ナフチル基など)であり、より好ましくは、水素原子、フッ素原子、塩素原子、炭素数1~6のアルキル基、炭素数1~6のアルコキシ基または炭素数6~10のアリール基であり、特に好ましくは、水素原子、炭素数1~4のアルキル基または炭素数1~4のアルコキシ基である。一般式(1)で表される化合物において、*m*は0または1を表す。

【0014】本発明に係る一般式(1)で表される化合物の具体例としては、例えば、以下の化合物を挙げることができるが、本発明はこれらに限定されるものではない。

・例示化合物

番号

(A群)

- A-1. 2-[N, N-ジフェニルアミノ]-9, 9-ジフェニルフルオレン  
 2. 2-[N-フェニル-N-(4'-メチルフェニル)アミノ]-9, 9-ジフェニルフルオレン  
 3. 2-[N-フェニル-N-(3'-メチルフェニル)アミノ]-9, 9-ジフェニルフルオレン  
 4. 2-[N-フェニル-N-(2'-メチルフェニル)アミノ]-9, 9-ジフェニルフルオレン  
 5. 2-[N-フェニル-N-(4'-エチルフェニル)アミノ]-9, 9-ジフェニルフルオレン  
 6. 2-[N-フェニル-N-(4'-*tert*-ブチルフェニル)アミノ]-9, 9-ジフェニルフルオレン  
 7. 2-[N-フェニル-N-(1'-ナフチル)アミノ]-9, 9-ジフェニルフルオレン  
 8. 2-[N-フェニル-N-(2'-ナフチル)アミノ]-9, 9-ジフェニルフルオレン  
 9. 2-[N-フェニル-N-(4'-ピリジル)アミノ]-9, 9-ジフェニルフルオレン  
 10. 2-[N-フェニル-N-(2'-チエニル)アミノ]-9, 9-ジフェニルフルオレン

- 【0015】11. 2-[N-(3'-メチルフェニル)-N-(4''-メチルフェニル)アミノ]-9, 9-ジフェニルフルオレン  
 12. 2-[N-(2'-メチルフェニル)-N-(4''-シクロヘキシルフェニル)アミノ]-9, 9-ジフェニルフルオレン  
 13. 2-[N, N-ジ(4'-メチルフェニル)アミノ]-9, 9-ジフェニルフルオレン

8

14. 2-[N, N-ジ(3'-メチルフェニル)アミノ]-9, 9-ジフェニルフルオレン  
 15. 2-[N, N-ジ(2'-メチルフェニル)アミノ]-9, 9-ジフェニルフルオレン  
 16. 2-[N, N-ジ(4'-エチルフェニル)アミノ]-9, 9-ジフェニルフルオレン  
 17. 2-[N, N-ジ(4'-*tert*-ブチルフェニル)アミノ]-9, 9-ジフェニルフルオレン  
 18. 2-[N, N-ジ(4'-*n*-オクチルフェニル)アミノ]-9, 9-ジフェニルフルオレン  
 19. 2-[N-フェニル-N-(2', 4'-ジメチルフェニル)アミノ]-9, 9-ジフェニルフルオレン  
 20. 2-[N-フェニル-N-(2', 6'-ジメチルフェニル)アミノ]-9, 9-ジフェニルフルオレン  
 21. 2-[N-フェニル-N-(3', 4'-ジメチルフェニル)アミノ]-9, 9-ジフェニルフルオレン  
 22. 2-[N, N-ジ(2', 4'-ジメチルフェニル)アミノ]-9, 9-ジフェニルフルオレン  
 23. 2-[N, N-ジ(2', 5'-ジイソプロピルフェニル)アミノ]-9, 9-ジフェニルフルオレン  
 24. 2-[N, N-ジ(3', 5'-ジメチルフェニル)アミノ]-9, 9-ジフェニルフルオレン  
 25. 2-[N, N-ジ(3', 4', 5'-トリメチルフェニル)アミノ]-9, 9-ジフェニルフルオレン  
 【0016】26. 2-[N-フェニル-N-(4'-メトキシフェニル)アミノ]-9, 9-ジフェニルフルオレン  
 27. 2-[N-フェニル-N-(3'-メトキシフェニル)アミノ]-9, 9-ジフェニルフルオレン  
 28. 2-[N-フェニル-N-(2'-メトキシフェニル)アミノ]-9, 9-ジフェニルフルオレン  
 29. 2-[N-フェニル-N-(4'-*n*-ブトキシフェニル)アミノ]-9, 9-ジフェニルフルオレン  
 30. 2-[N-(3'-メチルフェニル)-N-(4''-*n*-ヘキシルオキシフェニル)アミノ]-9, 9-ジフェニルフルオレン  
 31. 2-[N-(3'-メトキシフェニル)-N-(4''-メトキシフェニル)アミノ]-9, 9-ジフェニルフルオレン  
 32. 2-[N, N-ジ(3'-メトキシフェニル)アミノ]-9, 9-ジフェニルフルオレン  
 33. 2-[N, N-ジ(4'-エトキシフェニル)アミノ]-9, 9-ジフェニルフルオレン  
 34. 2-[N-フェニル-N-(2', 4'-ジメトキシフェニル)アミノ]-9, 9-ジフェニルフルオレン

(6)

9

35. 2-[N-フェニル-N-(3', 4'-ジメトキシフェニル)アミノ]-9, 9-ジフェニルフルオレン

36. 2-[N-フェニル-N-(3', 4', 5'-トリメトキシフェニル)アミノ]-9, 9-ジフェニルフルオレン

37. 2-[N, N-ジ(2'-メトキシ-4'-エトキシフェニル)アミノ]-9, 9-ジフェニルフルオレン

38. 2-[N-フェニル-N-(2'-メチル-4'-メトキシフェニル)アミノ]-9, 9-ジフェニルフルオレン

39. 2-[N-フェニル-N-(3'-エチル-5'-メトキシフェニル)アミノ]-9, 9-ジフェニルフルオレン

40. 2-[N, N-ジ(2'-メチル-4'-メトキシフェニル)アミノ]-9, 9-ジフェニルフルオレン

【0017】41. 2-[N, N-ジ(3'-メチル-5'-メトキシフェニル)アミノ]-9, 9-ジフェニルフルオレン

42. 2-[N-フェニル-N-(4'-フルオロフェニル)アミノ]-9, 9-ジフェニルフルオレン

43. 2-[N-フェニル-N-(3'-フルオロフェニル)アミノ]-9, 9-ジフェニルフルオレン

44. 2-[N-フェニル-N-(3'-クロロフェニル)アミノ]-9, 9-ジフェニルフルオレン

45. 2-[N-フェニル-N-(2'-クロロフェニル)アミノ]-9, 9-ジフェニルフルオレン

46. 2-[N, N-ジ(3'-フルオロフェニル)アミノ]-9, 9-ジフェニルフルオレン

47. 2-[N, N-ジ(2'-フルオロ-4'-メチルフェニル)アミノ]-9, 9-ジフェニルフルオレン

48. 2-[N, N-ジ(2'-フルオロ-4'-エトキシフェニル)アミノ]-9, 9-ジフェニルフルオレン

49. 2-[N, N-ジ(3'-メチル-4'-フルオロフェニル)アミノ]-9, 9-ジフェニルフルオレン

50. 2-[N, N-ジ(2'-メトキシ-4'-フルオロフェニル)アミノ]-9, 9-ジフェニルフルオレン

【0018】51. 2-[N-フェニル-N-(4'-フェニルフェニル)アミノ]-9, 9-ジフェニルフルオレン

52. 2-[N-フェニル-N-(2'-フェニルフェニル)アミノ]-9, 9-ジフェニルフルオレン

53. 2-[N-フェニル-N-(4'-[3'-メチルフェニル]フェニル)アミノ]-9, 9-ジフェニルフルオレン

10

フルオレン

54. 2-(N, N-ジフェニルアミノ)-9, 9-ビス(4'-メチルフェニル)フルオレン

55. 2-[N, N-ジ(1'-ナフチル)アミノ]-9, 9-ビス(4'-メチルフェニル)フルオレン

56. 2-[N, N-ジ(2'-フリル)アミノ]-9, 9-ビス(4'-メチルフェニル)フルオレン

57. 2-(N, N-ジフェニルアミノ)-9, 9-ビス(3'-メチルフェニル)フルオレン

58. 2-(N, N-ジフェニルアミノ)-9, 9-ビス(2'-メチルフェニル)フルオレン

59. 2-(N, N-ジフェニルアミノ)-9, 9-ビス(4'-エチルフェニル)フルオレン

60. 2-(N, N-ジフェニルアミノ)-9, 9-ビス(3'-tert-ブチルフェニル)フルオレン

61. 2-(N, N-ジフェニルアミノ)-9, 9-ビス(2', 4'-ジメチルフェニル)フルオレン

62. 2-(N, N-ジフェニルアミノ)-9, 9-ビス(3', 4'-ジエチルフェニル)フルオレン

63. 2-(N, N-ジフェニルアミノ)-9, 9-ビス(3', 5'-ジメチルフェニル)フルオレン

64. 2-[N, N-ジ(4'-メチルフェニル)アミノ]-9, 9-ビス(4"-メチルフェニル)フルオレン

65. 2-[N, N-ジ(3'-メチルフェニル)アミノ]-9, 9-ビス(4"-メチルフェニル)フルオレン

66. 2-[N, N-ジ(4'-メチルフェニル)アミノ]-9, 9-ビス(3", 5"-ジメチルフェニル)フルオレン

67. 2-[N, N-ジ(3'-メチルフェニル)アミノ]-9, 9-ビス(2", 4"-ジメチルフェニル)フルオレン

68. 2-[N, N-ジ(3'-メチルフェニル)アミノ]-9, 9-ビス(3", 5"-tert-ブチルフェニル)フルオレン

【0019】69. 2-[N-フェニル-N-(1'-ナフチル)アミノ]-9, 9-ビス(4"-メチルフェニル)フルオレン

70. 2-[N-フェニル-N-(3'-チエニル)アミノ]-9, 9-ビス(4"-メチルフェニル)フルオレン

71. 2-[N-フェニル-N-(3'-フリル)アミノ]-9, 9-ビス(4"-メチルフェニル)フルオレン

72. 2-[N-フェニル-N-(3'-メチルフェニル)アミノ]-9, 9-ビス(4"-メチルフェニル)フルオレン

73. 2-[N-フェニル-N-(3'-エチルフェニル)アミノ]-9, 9-ビス(4"-メチルフェニル)フルオレン

(7)

11

ル) フルオレン

74. 2-(N, N-ジフェニルアミノ)-9-フェニル-9-(4'-メチルフェニル)フルオレン

75. 2-(N, N-ジフェニルアミノ)-9-フェニル-9-(3'-エチルフェニル)フルオレン

76. 2-(N, N-ジフェニルアミノ)-9, 9-ビス(4'-メトキシフェニル)フルオレン

77. 2-(N, N-ジフェニルアミノ)-9, 9-ビス(4'-エトキシフェニル)フルオレン

78. 2-(N, N-ジフェニルアミノ)-9, 9-ビス(4'-n-ペンチルオキシフェニル)フルオレン 10

79. 2-(N, N-ジフェニルアミノ)-9, 9-ビス(2', 4'-ジメトキシフェニル)フルオレン

80. 2-(N, N-ジフェニルアミノ)-9, 9-ビス(3', 4'-ジメトキシフェニル)フルオレン

81. 2-(N, N-ジフェニルアミノ)-9, 9-ビス(3', 4'-ジ-n-プロポキシフェニル)フルオレン

82. 2-(N, N-ジフェニルアミノ)-9, 9-ビス(3'-メトキシ-4'-ジ-n-ブトキシフェニル)フルオレン 20

83. 2-[N-フェニル-N-(3'-メチルフェニル)アミノ]-9, 9-ビス(4"-メトキシフェニル)フルオレン

84. 2-[N-フェニル-N-(2'-メチルフェニル)アミノ]-9, 9-ビス(4"-メトキシフェニル)フルオレン

85. 2-[N-フェニル-N-(4'-tert-ブチルフェニル)アミノ]-9, 9-ビス(4"-メトキシフェニル)フルオレン 30

【0020】86. 2-[N, N-ジ(3'-メチルフェニル)アミノ]-9, 9-ビス(4"-メトキシフェニル)フルオレン

87. 2-[N, N-ジ(4'-エチルフェニル)アミノ]-9, 9-ビス(4"-メトキシフェニル)フルオレン

88. 2-[N, N-ジ(3'-メチルフェニル)アミノ]-9, 9-ビス(3", 5"-ジメトキシ-4"-エトキシフェニル)フルオレン

89. 2-[N-フェニル-N-(3'-メトキシフェニル)アミノ]-9, 9-ビス(4"-メチルフェニル)フルオレン 40

90. 2-[N, N-ジ(3'-フルオロフェニル)アミノ]-9, 9-ビス(4"-メチルフェニル)フルオレン

91. 2-[N, N-ジ(3'-クロロフェニル)アミノ]-9-フェニル-9-(4"-メトキシフェニル)フルオレン

92. 2-(N, N-ジフェニルアミノ)-9-(4'-メチルフェニル)-9-(4"-メトキシフェニル)フルオレン 50

12

ニル) フルオレン

93. 2-(N, N-ジフェニルアミノ)-9-(4'-メトキシフェニル)-9-(4"-エトキシフェニル)フルオレン

94. 2-(N, N-ジフェニルアミノ)-9, 9-ビス(3'-メチル-4'-メトキシフェニル)フルオレン

95. 2-(N, N-ジフェニルアミノ)-9, 9-ビス(2'-メチル-4'-エトキシフェニル)フルオレン

96. 2-(N, N-ジフェニルアミノ)-9, 9-ビス(3'-tert-ブチル-4'-メトキシフェニル)フルオレン

97. 2-(N, N-ジフェニルアミノ)-9, 9-ビス(3', 5'-ジメチル-4'-メトキシフェニル)フルオレン

98. 2-[N-フェニル-N-(2'-メチルフェニル)アミノ]-9, 9-ビス(3"-メチル-4"-メトキシフェニル)フルオレン

99. 2-[N, N-ジ(4'-メチルフェニル)アミノ]-9, 9-ビス(3", 5"-ジメチル-4"-エトキシフェニル)フルオレン

100. 2-[N, N-ジ(3'-メチルフェニル)アミノ]-9-(3"-メチル-4"-エトキシフェニル)-9-(4"-メトキシフェニル)フルオレン

【0021】101. 2-(N, N-ジフェニルアミノ)-9, 9-ビス(4'-フルオロフェニル)フルオレン

102. 2-(N, N-ジフェニルアミノ)-9, 9-ビス(4'-クロロフェニル)フルオレン 30

103. 2-(N, N-ジフェニルアミノ)-9, 9-ビス(3', 5'-ジフルオロフェニル)フルオレン

104. 2-[N, N-ジ(4'-エチルフェニル)アミノ]-9, 9-ビス(3"-クロロフェニル)フルオレン

105. 2-[N, N-ジ(3'-メトキシフェニル)アミノ]-9, 9-ビス(4"-クロロフェニル)フルオレン

106. 2-[N, N-ジ(4'-メチルフェニル)アミノ]-9-フェニル-9-(4"-クロロフェニル)フルオレン

107. 2-[N, N-ジ(4'-メチルフェニル)アミノ]-9, 9-ビス(2"-フルオロ-4"-エトキシフェニル)フルオレン

108. 2-[N, N-ジ(3'-メチルフェニル)アミノ]-9, 9-ビス(3"-クロロ-4"-エトキシフェニル)フルオレン

109. 2-[N, N-ジ(3'-フルオロフェニル)アミノ]-9, 9-ビス(2"-クロロ-4"-n-プロポキシフェニル)フルオレン 50

(8)

13

1110. 2- (N, N-ジフェニルアミノ) -9, 9-ビス (3', 5'-ジフルオロ-4'-メトキシフェニル) フルオレン
1111. 2- (N, N-ジフェニルアミノ) -9, 9-ビス (3', 5'-ジクロロ-4'-エトキシフェニル) フルオレン
1112. 2- [N-フェニル-N- (3'-エチル-5'-メトキシフェニル) アミノ] -9, 9-ビス (3"-フルオロ-4"-メチルフェニル) フルオレン
1113. 2- [N-フェニル-N- (2'-メチル-4'-メトキシフェニル) アミノ] -9, 9-ビス (3"-クロロ-4"-メトキシフェニル) フルオレン
1114. 2- [N, N-ジ (3'-メトキシフェニル) アミノ] -9- (3"-メチルフェニル) -9- (3"-メチル-4"-クロロフェニル) フルオレン
1115. 2- (N, N-ジフェニルアミノ) -9-フェニル-9- (4'-フルオロフェニル) フルオレン
1116. 2- [N, N-ジ (3'-メチルフェニル) アミノ] -9- (4"-エトキシフェニル) -9- (3"-クロロフェニル) フルオレン
1117. 2- (N, N-ジフェニルアミノ) -9, 9-ビス (3'-フェニル-4'-メトキシフェニル) フルオレン
- 【0022】 (B群)
- B-1. 2, 7-ビス (N, N-ジフェニルアミノ) -9, 9-ジフェニルフルオレン
2. 2, 7-ビス [N-フェニル-N- (4'-メチルフェニル) アミノ] -9, 9-ジフェニルフルオレン
3. 2, 7-ビス [N-フェニル-N- (3'-メチルフェニル) アミノ] -9, 9-ジフェニルフルオレン
4. 2, 7-ビス [N-フェニル-N- (2'-メチルフェニル) アミノ] -9, 9-ジフェニルフルオレン
5. 2, 7-ビス [N-フェニル-N- (4'-エチルフェニル) アミノ] -9, 9-ジフェニルフルオレン
6. 2, 7-ビス [N-フェニル-N- (4'-tert-ブチルフェニル) アミノ] -9, 9-ジフェニルフルオレン
7. 2, 7-ビス [N-フェニル-N- (1'-ナフチル) アミノ] -9, 9-ジフェニルフルオレン
8. 2, 7-ビス [N-フェニル-N- (2'-ナフチル) アミノ] -9, 9-ジフェニルフルオレン
9. 2, 7-ビス [N-フェニル-N- (2'-ピリジル) アミノ] -9, 9-ジフェニルフルオレン
10. 2, 7-ビス [N-フェニル-N- (2'-フリル) アミノ] -9, 9-ジフェニルフルオレン
11. 2, 7-ビス [N- (3'-メチルフェニル) -N- (4"-メチルフェニル) アミノ] -9, 9-ジフェニルフルオレン
12. 2, 7-ビス [N- (2'-メチルフェニル) -N- (4"-シクロヘキシルフェニル) アミノ] -

14

- 9, 9-ジフェニルフルオレン
- 【0023】 13. 2, 7-ビス [N, N-ジ (4'-メチルフェニル) アミノ] -9, 9-ジフェニルフルオレン
14. 2, 7-ビス [N, N-ジ (3'-メチルフェニル) アミノ] -9, 9-ジフェニルフルオレン
15. 2, 7-ビス [N, N-ジ (2'-メチルフェニル) アミノ] -9, 9-ジフェニルフルオレン
16. 2, 7-ビス [N, N-ジ (4'-エチルフェニル) アミノ] -9, 9-ジフェニルフルオレン
17. 2, 7-ビス [N, N-ジ (4'-tert-ブチルフェニル) アミノ] -9, 9-ジフェニルフルオレン
18. 2, 7-ビス [N, N-ジ (4'-n-オクチルフェニル) アミノ] -9, 9-ジフェニルフルオレン
19. 2, 7-ビス [N-フェニル-N- (2', 4'-ジメチルフェニル) アミノ] -9, 9-ジフェニルフルオレン
20. 2, 7-ビス [N-フェニル-N- (2', 6'-ジメチルフェニル) アミノ] -9, 9-ジフェニルフルオレン
21. 2, 7-ビス [N-フェニル-N- (3', 4'-ジメチルフェニル) アミノ] -9, 9-ジフェニルフルオレン
22. 2, 7-ビス [N, N-ジ (2', 4'-ジメチルフェニル) アミノ] -9, 9-ジフェニルフルオレン
23. 2, 7-ビス [N, N-ジ (2', 5'-ジイソプロピルフェニル) アミノ] -9, 9-ジフェニルフルオレン
24. 2, 7-ビス [N, N-ジ (3', 5'-ジメチルフェニル) アミノ] -9, 9-ジフェニルフルオレン
25. 2, 7-ビス [N, N-ジ (3', 4', 5'-トリメチルフェニル) アミノ] -9, 9-ジフェニルフルオレン
- 【0024】 26. 2- (N, N-ジフェニルアミノ) -7- [N', N'-ジ (3'-メチルフェニル) アミノ] -9, 9-ジフェニルフルオレン
27. 2- [N, N-ジ (3'-メチルフェニルアミノ) ] -7- [N', N'-ジ (4"-メチルフェニル) アミノ] -9, 9-ジフェニルフルオレン
28. 2- (N, N-ジフェニルアミノ) -7- [N'-フェニル-N' - (3'-メチルフェニル) アミノ] -9, 9-ジフェニルフルオレン
29. 2- (N, N-ジフェニルアミノ) -7- [N'-フェニル-N' - (3', 5'-ジメチルフェニル) アミノ] -9, 9-ジフェニルフルオレン
30. 2- [N-フェニル-N- (4'-メチルフェニル) アミノ] -7- [N'-フェニル-N' - (3"-メチルフェニル) アミノ] -9, 9-ジフェニルフル



(9)

15

オレン

31. 2, 7-ビス [N-フェニル-N- (4' -メトキシフェニル) アミノ] -9, 9-ジフェニルフルオレン

32. 2, 7-ビス [N-フェニル-N- (3' -メトキシフェニル) アミノ] -9, 9-ジフェニルフルオレン

33. 2, 7-ビス [N-フェニル-N- (2' -メトキシフェニル) アミノ] -9, 9-ジフェニルフルオレン

34. 2, 7-ビス [N-フェニル-N- (4' -n-ブトキシフェニル) アミノ] -9, 9-ジフェニルフルオレン

35. 2, 7-ビス [N- (3' -メチルフェニル) -N- (4' -n-ヘキシロキシフェニル) アミノ] -9, 9-ジフェニルフルオレン

36. 2, 7-ビス [N- (3' -メトキシフェニル) -N- (4' -メトキシフェニル) アミノ] -9, 9-ジフェニルフルオレン

37. 2, 7-ビス [N, N-ジ (4' -エトキシフェニル) アミノ] -9, 9-ジフェニルフルオレン 20

38. 2, 7-ビス [N, N-ジ (3' -メトキシフェニル) アミノ] -9, 9-ジフェニルフルオレン

39. 2, 7-ビス [N-フェニル-N- (2' , 4' -ジメトキシフェニル) アミノ] -9, 9-ジフェニルフルオレン

40. 2, 7-ビス [N-フェニル-N- (3' , 4' -ジメトキシフェニル) アミノ] -9, 9-ジフェニルフルオレン

【0025】41. 2, 7-ビス [N-フェニル-N- (3' , 4' , 5' -トリメトキシフェニル) アミノ] -9, 9-ジフェニルフルオレン 30

42. 2, 7-ビス [N, N-ジ (2' -メトキシ-4' -エトキシフェニル) アミノ] -9, 9-ジフェニルフルオレン

43. 2, 7-ビス [N-フェニル-N- (2' -メチル-4' -メトキシフェニル) アミノ] -9, 9-ジフェニルフルオレン

44. 2, 7-ビス [N-フェニル-N- (3' -エチル-5' -メトキシフェニル) アミノ] -9, 9-ジフェニルフルオレン 40

45. 2, 7-ビス [N, N-ジ (2' -メチル-4' -メトキシフェニル) アミノ] -9, 9-ジフェニルフルオレン

46. 2, 7-ビス [N, N- (3' -メチル-5' -メトキシフェニル) アミノ] -9, 9-ジフェニルフルオレン

47. 2- (N, N-ジフェニルアミノ) -7- [N' , N' -ジ (4' -シクロヘキシロキシフェニル) アミノ] -9, 9-ジフェニルフルオレン 50

16

48. 2- [N, N-ジ (3' -メチルフェニル) アミノ] -7- [N' , N' -ジ (4' -メトキシフェニル) アミノ] -9, 9-ジフェニルフルオレン

49. 2- (N, N-ジフェニルアミノ) -7- [N' -フェニル-N' - (2' -メチル-4' -メトキシフェニル) アミノ] -9, 9-ジフェニルフルオレン

50. 2- [N-フェニル-N- (3' -メチルフェニル) アミノ] -7- [N' -フェニル-N' - (3' -エトキシフェニル) アミノ] -9, 9-ジフェニルフルオレン 10

【0026】51. 2, 7-ビス [N-フェニル-N- (4' -フルオロフェニル) アミノ] -9, 9-ジフェニルフルオレン

52. 2, 7-ビス [N-フェニル-N- (3' -フルオロフェニル) アミノ] -9, 9-ジフェニルフルオレン

53. 2, 7-ビス [N-フェニル-N- (3' -クロロフェニル) アミノ] -9, 9-ジフェニルフルオレン

54. 2, 7-ビス [N-フェニル-N- (2' -クロロフェニル) アミノ] -9, 9-ジフェニルフルオレン

55. 2, 7-ビス [N, N-ジ (3' -フルオロフェニル) アミノ] -9, 9-ジフェニルフルオレン

56. 2, 7-ビス [N, N-ジ (2' -フルオロ-4' -メチルフェニル) アミノ] -9, 9-ジフェニルフルオレン

57. 2, 7-ビス [N, N-ジ (2' -フルオロ-4' -エトキシフェニル) アミノ] -9, 9-ジフェニルフルオレン

58. 2, 7-ビス [N, N-ジ (3' -メチル-4' -フルオロフェニル) アミノ] -9, 9-ジフェニルフルオレン

59. 2, 7-ビス [N, N-ジ (2' -メトキシ-4' -フルオロフェニル) アミノ] -9, 9-ジフェニルフルオレン

60. 2- (N, N-ジフェニルアミノ) -7- [N' , N' -ジ (4' -フルオロフェニル) アミノ] -9, 9-ジフェニルフルオレン

61. 2- (N, N-ジフェニルアミノ) -7- [N' , N' -ジ (3' -クロロフェニル) アミノ] -9, 9-ジフェニルフルオレン

62. 2- [N, N-ジ (3' -メチルフェニル) アミノ] -7- [N' , N' -ジ (3' -クロロフェニル) アミノ] -9, 9-ジフェニルフルオレン

63. 2- [N, N-ジ (4' -メトキシフェニル) アミノ] -7- [N' , N' -ジ (3' -フルオロフェニル) アミノ] -9, 9-ジフェニルフルオレン

64. 2- [N-フェニル-N- (4' -メチルフェニル) アミノ] -9, 9-ジフェニルフルオレン 50

(10)

17

ニル) アミノ] -7- [N-フェニル-N' -ジ (3" -クロロフェニル) アミノ] -9, 9-ジフェニルフルオレン

【0027】65. 2, 7-ビス [N-フェニル-N' - (4' -フェニルフェニル) アミノ] -9, 9-ジフェニルフルオレン

66. 2, 7-ビス [N-フェニル-N' - (2' -フェニルフェニル) アミノ] -9, 9-ジフェニルフルオレン

67. 2, 7-ビス [N-フェニル-N' - (4' -[ 3" -メチルフェニル] フェニル) アミノ] -9, 9-ジフェニルフルオレン

68. 2- (N, N-ジフェニルアミノ) -7- [N' -フェニル-N' - (4' -[ 3" -メチルフェニル] フェニル) アミノ] -9, 9-ジフェニルフルオレン

69. 2- [N, N-ジ (4' -メチルフェニル) アミノ] -7- [N' -フェニル-N' - (4" -フェニルフェニル) アミノ] -9, 9-ジフェニルフルオレン

70. 2- [N, N-ジ (3' -メチルフェニル) アミノ] -7- [N' - (4' -メチルフェニル) -N' - (4' -[ 3" -メチルフェニル] フェニル) アミノ] -9, 9-ジフェニルフルオレン

71. 2- [N, N-ジ (4' -メチルフェニル) アミノ] -7- [N' -フェニル-N' - (1" -ナフチル) アミノ] -9, 9-ジフェニルフルオレン

72. 2, 7-ビス (N, N-ジフェニルアミノ) -9, 9-ビス (4' -メチルフェニル) フルオレン

73. 2, 7-ビス (N, N-ジフェニルアミノ) -9, 9-ビス (3' -メチルフェニル) フルオレン

74. 2, 7-ビス (N, N-ジフェニルアミノ) -9, 9-ビス (2' -メチルフェニル) フルオレン

75. 2, 7-ビス (N, N-ジフェニルアミノ) -9, 9-ビス (4' -エチルフェニル) フルオレン

【0028】76. 2, 7-ビス (N, N-ジフェニルアミノ) -9, 9-ビス (3' -tert-ブチルフェニル) フルオレン

77. 2, 7-ビス (N, N-ジフェニルアミノ) -9, 9-ビス (2', 4' -ジメチルフェニル) フルオレン

78. 2, 7-ビス (N, N-ジフェニルアミノ) -9, 9-ビス (3', 4' -ジエチルフェニル) フルオレン

79. 2, 7-ビス (N, N-ジフェニルアミノ) -9, 9-ビス (3', 5' -ジメチルフェニル) フルオレン

80. 2, 7-ビス [N, N-ジ (4' -メチルフェニル) アミノ] -9, 9-ビス (4" -メチルフェニル) フルオレン

81. 2, 7-ビス [N, N-ジ (3' -メチルフェ

18

ニル) アミノ] -9, 9-ビス (4" -メチルフェニル) フルオレン

82. 2, 7-ビス [N, N-ジ (4' -メチルフェニル) アミノ] -9, 9-ビス (3", 5" -ジメチルフェニル) フルオレン

83. 2, 7-ビス [N, N-ジ (3' -メチルフェニル) アミノ] -9, 9-ビス (2", 4" -ジメチルフェニル) フルオレン

84. 2, 7-ビス [N, N-ジ (3' -メチルフェニル) アミノ] -9, 9-ビス (3", 5" -ジ-tert-ブチルフェニル) フルオレン

85. 2, 7-ビス [N-フェニル-N' - (3' -メチルフェニル) アミノ] -9, 9-ビス (4" -メチルフェニル) フルオレン

86. 2, 7-ビス [N-フェニル-N' - (3' -エチルフェニル) アミノ] -9, 9-ビス (4" -メチルフェニル) フルオレン

87. 2, 7-ビス [N-フェニル-N' - (1' -ナフチル) アミノ] -9, 9-ビス (4" -メチルフェニル) フルオレン

88. 2, 7-ビス (N, N-ジフェニルアミノ) -9-フェニル-9- (4' -メチルフェニル) フルオレン

89. 2, 7-ビス (N, N-ジフェニルアミノ) -9-フェニル-9- (3' -エチルフェニル) フルオレン

90. 2, 7-ビス (N, N-ジフェニルアミノ) -9, 9-ビス (4' -メトキシフェニル) フルオレン

【0029】91. 2, 7-ビス (N, N-ジフェニルアミノ) -9, 9-ビス (4' -エトキシフェニル) フルオレン

92. 2, 7-ビス (N, N-ジフェニルアミノ) -9, 9-ビス (4' -n-ペンチルオキシフェニル) フルオレン

93. 2, 7-ビス (N, N-ジフェニルアミノ) -9, 9-ビス (2', 4' -ジメトキシフェニル) フルオレン

94. 2, 7-ビス (N, N-ジフェニルアミノ) -9, 9-ビス (3', 4' -ジメトキシフェニル) フルオレン

95. 2, 7-ビス (N, N-ジフェニルアミノ) -9, 9-ビス (3', 4' -ジ-n-プロポキシフェニル) フルオレン

96. 2, 7-ビス (N, N-ジフェニルアミノ) -9, 9-ビス (3' -メトキシ-4' -ジ-n-ブトキシフェニル) フルオレン

97. 2, 7-ビス [N-フェニル-N' - (3' -メチルフェニル) アミノ] -9, 9-ビス (4" -メトキシフェニル) フルオレン

98. 2, 7-ビス [N-フェニル-N' - (2' -メ

(11)

19

チルフェニル) アミノ] -9, 9-ビス (4" -メトキシフェニル) フルオレン

99. 2, 7-ビス [N-フェニル-N- (4' -tert-ブチルフェニル) アミノ] -9, 9-ビス (4" -メトキシフェニル) フルオレン

100. 2, 7-ビス [N, N-ジ (3' -メチルフェニル) アミノ] -9, 9-ビス (4" -メトキシフェニル) フルオレン

101. 2, 7-ビス [N, N-ジ (4' -エチルフェニル) アミノ] -9, 9-ビス (4" -メトキシフェニル) フルオレン

102. 2, 7-ビス [N, N-ジ (3' -メチルフェニル) アミノ] -9, 9-ビス (3" , 5" -ジメトキシ-4" -エトキシフェニル) フルオレン

103. 2, 7-ビス [N-フェニル-N- (3' -メトキシフェニル) アミノ] -9, 9-ビス (4" -メチルフェニル) フルオレン

104. 2, 7-ビス [N, N-ジ (3' -フルオロフェニル) アミノ] -9, 9-ビス (4" -メチルフェニル) フルオレン

105. 2, 7-ビス [N, N-ジ (3' -クロロフェニル) アミノ] -9-フェニル-9- (4" -メトキシフェニル) フルオレン

【0030】106. 2, 7-ビス (N, N-ジフェニルアミノ) -9- (4' -メチルフェニル) -9- (4" -メトキシフェニル) フルオレン

107. 2, 7-ビス (N, N-ジフェニルアミノ) -9- (4' -メトキシフェニル-9- (4" -エトキシフェニル) フルオレン

108. 2, 7-ビス (N, N-ジフェニルアミノ) -9, 9-ビス (3' -メチル-4' -メトキシフェニル) フルオレン

109. 2, 7-ビス (N, N-ジフェニルアミノ) -9, 9-ビス (2' -メチル-4' -エトキシフェニル) フルオレン

110. 2, 7-ビス (N, N-ジフェニルアミノ) -9, 9-ビス (3' -tert-ブチル-4' -メトキシフェニル) フルオレン

111. 2, 7-ビス (N, N-ジフェニルアミノ) -9, 9-ビス (3' , 5' -ジメチル-4' -メトキシフェニル) フルオレン

112. 2, 7-ビス [N-フェニル-N- (2' -メチルフェニル) アミノ] -9, 9-ビス (3" -メチル-4" -メトキシフェニル) フルオレン

113. 2, 7-ビス [N, N-ジ (4' -メチルフェニル) アミノ] -9, 9-ビス (3" , 5" -ジメチル-4" -エトキシフェニル) フルオレン

114. 2, 7-ビス [N, N-ジ (3' -メチルフェニル) アミノ] -9- (3" -メチル-4" -エトキシフェニル) -9- (4" -メトキシフェニル) フルオ

20

レン

115. 2, 7-ビス (N, N-ジフェニルアミノ) -9, 9-ビス (4' -フルオロフェニル) フルオレン

116. 2, 7-ビス (N, N-ジフェニルアミノ) -9, 9-ビス (4' -クロロフェニル) フルオレン

117. 2, 7-ビス (N, N-ジフェニルアミノ) -9, 9-ビス (3' , 5' -ジフルオロフェニル) フルオレン

118. 2, 7-ビス [N, N-ジ (4' -エチルフェニル) アミノ] -9, 9-ビス (3" -クロロフェニル) フルオレン

119. 2, 7-ビス [N, N-ジ (3' -メトキシフェニル) アミノ] -9, 9-ビス (4" -クロロフェニル) フルオレン

120. 2, 7-ビス [N, N-ジ (4' -メチルフェニル) アミノ] -9-フェニル-9- (4" -クロロフェニル) フルオレン

【0031】121. 2, 7-ビス [N, N-ジ (4' -メチルフェニル) アミノ] -9, 9-ビス (2" -フルオロ-4" -エトキシフェニル) フルオレン

122. 2, 7-ビス [N, N-ジ (3' -メチルフェニル) アミノ] -9, 9-ビス (3" -クロロ-4" -エトキシフェニル) フルオレン

123. 2, 7-ビス [N, N-ジ (3' -フルオロフェニル) アミノ] -9, 9-ビス (2" -クロロ-4" -n-プロポキシフェニル) フルオレン

124. 2, 7-ビス (N, N-ジフェニルアミノ) -9, 9-ビス (3' , 5' -ジフルオロ-4' -メトキシフェニル) フルオレン

125. 2, 7-ビス (N, N-ジフェニルアミノ) -9, 9-ビス (3' , 5' -ジクロロ-4' -エトキシフェニル) フルオレン

126. 2, 7-ビス [N-フェニル-N- (3' -エチル-5' -メトキシフェニル) アミノ] -9, 9-ビス (3" -フルオロ-4" -メチルフェニル) フルオレン

127. 2, 7-ビス [N-フェニル-N- (2' -メチル-4' -メトキシフェニル) アミノ] -9, 9-ビス (3" -クロロ-4" -メトキシフェニル) フルオレン

128. 2, 7-ビス [N, N-ジ (3' -メトキシフェニル) アミノ] -9- (3" -メチルフェニル) -9- (3" -メチル-4" -クロロフェニル) フルオレン

129. 2, 7-ビス (N, N-ジフェニルアミノ) -9-フェニル-9- (4' -フルオロフェニル) フルオレン

130. 2, 7-ビス [N, N-ジ (3' -メチルフェニル) アミノ] -9- (4" -エトキシフェニル) -

(12)

21

9- (3''-クロロフェニル)フルオレン

131. 2, 7-ビス (N, N-ジフェニルアミノ)-9, 9-ビス (3'-フェニル-4'-メトキシフェニル)フルオレン

【0032】尚、一般式(1)で表される化合物のうち、 $m=0$ で表される化合物、すなわち、A群の化合物は、例えば、2-アミノ-9, 9-ジフェニルフルオレン誘導体とハロゲン化アリール誘導体を、銅化合物の存在下で反応(ウルマン反応)させて製造することができる。また、例えば、2-ハロゲノ-9, 9-ジフェニルフルオレン誘導体とN, N-ジアリールアミン誘導体を、銅化合物の存在下で反応させて製造することもできる。また、一般式(1)で表される化合物のうち、 $m=1$ で表される化合物、すなわち、B群の化合物は、例えば、2, 7-ジアミノ-9, 9-ジフェニルフルオレン誘導体とハロゲン化アリール誘導体を、銅化合物の存在下で反応(ウルマン反応)させて製造することができる。また、例えば、2, 7-ジハロゲノ-9, 9-ジフェニルフルオレン誘導体とN, N-ジアリールアミン誘導体を、銅化合物の存在下で反応させて製造することもできる。

【0033】有機電界発光素子は、通常、一对の電極間に、少なくとも1種の発光成分を含有する発光層を少なくとも一層挟持してなるものである。発光層に使用する化合物の正孔注入および正孔輸送、電子注入および電子輸送の各機能レベルを考慮し、所望に応じて、正孔注入輸送成分を含有する正孔注入輸送層または/および電子注入輸送成分を含有する電子注入輸送層を設けることもできる。例えば、発光層に使用する化合物の正孔注入機能、正孔輸送機能または/および電子注入機能、電子輸送機能が良好な場合には、発光層が正孔注入輸送層または/および電子注入輸送層を兼ねた型の素子の構成とすることができる。勿論、場合によっては、正孔注入輸送層および電子注入輸送層の両方の層を設けない型の素子(一層型の素子)の構成とすることもできる。また、正孔注入輸送層、電子注入輸送層および発光層のそれぞれの層は、一層構造であっても多層構造であってもよく、正孔注入輸送層および電子注入輸送層は、それぞれの層において、注入機能を有する層と輸送機能を有する層を別々に設けて構成することもできる。

【0034】本発明の有機電界発光素子において、一般式(1)で表される化合物は、正孔注入輸送成分または/および発光成分に用いることが好ましく、正孔注入輸送成分に用いることがより好ましい。本発明の有機電界発光素子においては、一般式(1)で表される化合物は、単独で使用してもよく、あるいは複数併用してもよい。

【0035】本発明の有機電界発光素子の構成としては、特に限定するものではなく、例えば、(A)陽極/正孔注入輸送層/発光層/電子注入輸送層/陰極型素子

22

(図1)、(B)陽極/正孔注入輸送層/発光層/陰極型素子(図2)、(C)陽極/発光層/電子注入輸送層/陰極型素子(図3)、(D)陽極/発光層/陰極型素子(図4)などを挙げることができる。さらには、発光層を電子注入輸送層で挟み込んだ型の素子である(E)陽極/正孔注入輸送層/電子注入輸送層/発光層/電子注入輸送層/陰極型素子(図5)とすることもできる。

(D)型の素子構成としては、発光成分を一層形態で一对の電極間に挟持させた型の素子は勿論であるが、さらには、例えば、(F)正孔注入輸送成分、発光成分および電子注入輸送成分を混合させた一層形態で一对の電極間に挟持させた型の素子(図6)、(G)正孔注入輸送成分および発光成分を混合させた一層形態で一对の電極間に挟持させた型の素子(図7)、(H)発光成分および電子注入輸送成分を混合させた一層形態で一对の電極間に挟持させた型の素子(図8)がある。

【0036】本発明の有機電界発光素子は、これらの素子構成に限るものではなく、それぞれの型の素子において、正孔注入輸送層、発光層、電子注入輸送層を複数層設けたりすることができる。また、それぞれの型の素子において、正孔注入輸送層と発光層との間に、正孔注入輸送成分と発光成分の混合層または/および発光層と電子注入輸送層との間に、発光成分と電子注入輸送成分の混合層を設けることもできる。より好ましい有機電界発光素子の構成は、(A)型素子、(B)型素子、(E)型素子、(F)型素子または(G)型素子であり、さらに好ましくは、(A)型素子、(B)型素子、(F)型素子または(G)型素子である。

【0037】本発明の有機電界発光素子としては、例えば、(図1)に示す(A)陽極/正孔注入輸送層/発光層/電子注入輸送層/陰極型素子について説明する。

(図1)において、1は基板、2は陽極、3は正孔注入輸送層、4は発光層、5は電子注入輸送層、6は陰極、7は電源を示す。

【0038】本発明の有機電界発光素子は、基板1に支持されていることが好ましく、基板としては、特に限定するものではないが、透明ないし半透明であることが好ましく、例えば、ガラス板、透明プラスチックシート

(例えば、ポリエステル、ポリカーボネート、ポリスルホン、ポリメチルメタクリレート、ポリプロピレン、ポリエチレンなどのシート)、半透明プラスチックシート、石英、透明セラミックスあるいはこれらを組み合わせた複合シートからなるものを挙げることができる。さらに、基板に、例えば、カラーフィルター膜、色変換膜、誘電体反射膜を組み合わせ、発光色をコントロールすることもできる。

【0039】陽極2としては、比較的仕事関数の大きい金属、合金または電気導性化合物を電極物質として使用することが好ましい。陽極に使用する電極物質としては、例えば、金、白金、銀、銅、コバルト、ニッケル、

(13)

23

パラジウム、バナジウム、タングステン、酸化錫、酸化亜鉛、ITO（インジウム・ティン・オキシド）、ポリチオフェン、ポリピロールなどを挙げることができる。これらの電極物質は、単独で使用してもよく、あるいは複数併用してもよい。陽極は、これらの電極物質を、例えば、蒸着法、スパッタリング法等の方法により、基板の上に形成することができる。また、陽極は一層構造であってもよく、あるいは多層構造であってもよい。陽極のシート電気抵抗は、好ましくは、数百 $\Omega/\square$ 以下、より好ましくは、5～50 $\Omega/\square$ 程度に設定する。陽極の厚みは、使用する電極物質の材料にもよるが、一般に、5～1000nm程度、より好ましくは、10～500nm程度に設定する。

【0040】正孔注入輸送層3は、陽極からの正孔（ホール）の注入を容易にする機能、および注入された正孔を輸送する機能を有する化合物を含有する層である。正孔注入輸送層は、一般式（1）で表される化合物および／または他の正孔注入輸送機能を有する化合物（例えば、フタロシアニン誘導体、トリアリールメタン誘導体、トリアリールアミン誘導体、オキサゾール誘導体、ヒドラゾン誘導体、スチルベン誘導体、ピラゾリン誘導体、ポリシラン誘導体、ポリフェニレンビニレンおよびその誘導体、ポリチオフェンおよびその誘導体、ポリ-N-ビニルカルバゾール誘導体など）を少なくとも1種用いて形成することができる。尚、正孔注入輸送機能を有する化合物は、単独で使用してもよく、あるいは複数併用してもよい。本発明の有機電界発光素子においては、正孔注入輸送層に一般式（1）で表される化合物を含有していることが好ましい。

【0041】本発明において用いる他の正孔注入輸送機能を有する化合物としては、トリアリールアミン誘導体（例えば、4, 4'-ビス〔N-フェニル-N-（4''-メチルフェニル）アミノ〕ビフェニル、4, 4'-ビス〔N-フェニル-N-（3''-メチルフェニル）アミノ〕ビフェニル、4, 4'-ビス〔N-フェニル-N-（3''-メトキシフェニル）アミノ〕ビフェニル、4, 4'-ビス〔N-フェニル-N-（1''-ナフチル）アミノ〕ビフェニル、3, 3'-ジメチル-4, 4'-ビス〔N-フェニル-N-（3''-メチルフェニル）アミノ〕ビフェニル、1, 1'-ビス〔4'-〔N, N'-ジ（4''-メチルフェニル）アミノ〕フェニル〕シクロヘキサセン、9, 10-ビス〔N-（4'-メチルフェニル）-N-（4''-n-ブチルフェニル）アミノ〕フェナントレン、3, 8-ビス（N, N'-ジフェニルアミノ）-6-フェニルフェナントリジン、4-メチル-N, N'-ビス〔4'', 4'''-ビス〔N', N'-ジ（4-メチルフェニル）アミノ〕ビフェニル-4'-イール〕アニリン、N, N'-ビス〔4-（ジフェニルアミノ）フェニル〕-N, N'-ジフェニル-1, 3-ジアミノベンゼン、N, N'-ビス〔4-（ジフェニルアミノ）

24

フェニル〕-N, N'-ジフェニル-1, 4-ジアミノベンゼン、5, 5'-ビス〔4-（ビス〔4-メチルフェニル〕アミノ）フェニル〕-2, 2': 5', 2''-ターチオフェン、1, 3, 5-トリス（ジフェニルアミノ）ベンゼン、4, 4', 4''-トリス（N-カルバゾリル）トリフェニルアミン、4, 4', 4''-トリス〔N-（3''-メチルフェニル）-N-フェニルアミノ〕トリフェニルアミン、1, 3, 5-トリス〔4-ジフェニルアミノフェニル〕フェニルアミノ〕ベンゼンなど）、ポリチオフェンおよびその誘導体、ポリ-N-ビニルカルバゾール誘導体がより好ましい。一般式（1）で表される化合物と他の正孔注入輸送機能を有する化合物を併用する場合、正孔注入輸送層中に占める一般式（1）で表される化合物の割合は、好ましくは、0.1重量%以上、より好ましくは、0.1～99.9重量%程度、さらに好ましくは、1～99重量%程度、特に好ましくは、5～95重量%程度に調製する。

【0042】発光層4は、正孔および電子の注入機能、それらの輸送機能、正孔と電子の再結合により励起子を生成させる機能を有する化合物を含有する層である。発光層は、一般式（1）で表される化合物および／または他の発光機能を有する化合物（例えば、アクリドン誘導体、キナクリドン誘導体、多環芳香族化合物〔例えば、ルブレン、アントラセン、テトラセン、ピレン、ペリレン、クリセン、デカシクレン、コロネン、テトラフェニルシクロペンタジエン、ペンタフェニルシクロペンタジエン、9, 10-ジフェニルアントラセン、9, 10-ビス（フェニルエチニル）アントラセン、1, 4-ビス（9'-エチニルアントラセニル）ベンゼン、4, 4'-ビス（9''-エチニルアントラセニル）ビフェニル〕、トリアリールアミン誘導体〔例えば、正孔注入輸送機能を有する化合物として前述した化合物を挙げることができる〕、有機金属錯体〔例えば、トリス（8-キノリノラート）アルミニウム、ビス（10-ベンゾ[h]キノリノラート）ベリリウム、2-（2'-ヒドロキシフェニル）ベンゾオキサゾールの亜鉛塩、2-（2'-ヒドロキシフェニル）ベンゾチアゾールの亜鉛塩、4-ヒドロキシアクリジンの亜鉛塩〕、スチルベン誘導体〔例えば、1, 1, 4, 4-テトラフェニル-1, 3-ブタジエン、4, 4'-ビス（2, 2-ジフェニルビニル）ビフェニル〕、クマリン誘導体〔例えば、クマリン1、クマリン6、クマリン7、クマリン30、クマリン106、クマリン138、クマリン151、クマリン152、クマリン153、クマリン307、クマリン311、クマリン314、クマリン334、クマリン338、クマリン343、クマリン500〕、ピラン誘導体〔例えば、DCM1、DCM2〕、オキサゾン誘導体〔例えば、ナイルレッド〕、ベンゾチアゾール誘導体、ベンゾオキサゾール誘導体、ベンゾイミダゾール誘導体、ピラジン誘導体、ケイ皮酸エステル誘導体、ポリ-

(14)

25

N-ビニルカルバゾールおよびその誘導体、ポリチオフェンおよびその誘導体、ポリフェニレンおよびその誘導体、ポリフルオレンおよびその誘導体、ポリフェニレンビニレンおよびその誘導体、ポリビフェニレンビニレンおよびその誘導体、ポリターフェニレンビニレンおよびその誘導体、ポリナフチレンビニレンおよびその誘導体、ポリチエニレンビニレンおよびその誘導体などを少なくとも1種用いて形成することができる。

【0043】本発明の有機電界発光素子においては、発光層に一般式(1)で表される化合物を含有していることが好ましい。一般式(1)で表される化合物と他の発光機能を有する化合物を併用する場合、発光層中に占める一般式(1)で表される化合物の割合は、好ましくは、0.001~99.999重量%程度に調製する。本発明において用いる他の発光機能を有する化合物としては、多環芳香族化合物、発光性有機金属錯体がより好ましい。例えば、J. Appl. Phys., 65, 3610 (1989)、特開平5-214332号公報に記載のように、発光層をホスト化合物とゲスト化合物(ドーパント)とより構成することもできる。一般式(1)で表される化合物を、ホスト化合物として発光層を形成することができ、さらにはゲスト化合物として発光層を形成することもできる。一般式(1)で表される化合物を、ホスト化合物として発光層を形成する場合、ゲスト化合物としては、例えば、前記の他の発光機能を有する化合物を挙げることができ、中でも多環芳香族化合物は好ましい。この場合、一般式(1)で表される化合物に対して、他の発光機能を有する化合物を、0.001~40重量%程度、好ましくは、より好ましくは、0.1~20重量%程度使用する。

【0044】一般式(1)で表される化合物と併用する多環芳香族化合物としては、特に限定するものではないが、例えば、ルブレン、アントラセン、テトラセン、ピレン、ペリレン、クリセン、デカシクレン、コロネン、テトラフェニルシクロペンタジエン、ペンタフェニルシクロペンタジエン、9,10-ジフェニルアントラセン、9,10-ビス(フェニルエチル)アントラセン、1,4-ビス(9'-エチルアントラセニル)ベンゼン、4,4'-ビス(9"-エチルアントラセニル)ビフェニルなどを挙げることができる。勿論、多環芳香族化合物は単独で使用してもよく、あるいは複数併用してもよい。

【0045】一般式(1)で表される化合物を、ゲスト化合物として用いて発光層を形成する場合、ホスト化合物としては、発光性有機金属錯体が好ましい。この場合、発光性有機金属錯体に対して、一般式(1)で表される化合物を、好ましくは、0.001~40重量%程度、より好ましくは、0.1~20重量%程度使用する。一般式(1)で表される化合物と併用する発光性有機金属錯体としては、特に限定するものではないが、発

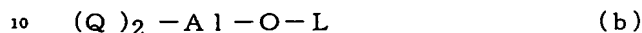
26

光性有機アルミニウム錯体が好ましく、置換または未置換の8-キノリノラート配位子を有する発光性有機アルミニウム錯体がより好ましい。

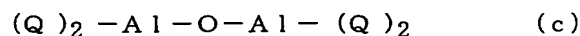
【0046】好ましい発光性有機金属錯体としては、例えば、一般式(a)~一般式(c)で表される発光性有機アルミニウム錯体を挙げることができる。



(式中、Qは置換または未置換の8-キノリノラート配位子を表す)



(式中、Qは置換8-キノリノラート配位子を表し、O-Lはフェノラート配位子であり、Lはフェニル部分を含む炭素数6~24の炭化水素基を表す)



(式中、Qは置換8-キノリノラート配位子を表す)

発光性有機金属錯体の具体例としては、例えば、トリス(8-キノリノラート)アルミニウム、トリス(4-メチル-8-キノリノラート)アルミニウム、トリス(5-メチル-8-キノリノラート)アルミニウム、トリス(3,4-ジメチル-8-キノリノラート)アルミニウム、トリス(4,5-ジメチル-8-キノリノラート)アルミニウム、トリス(4,6-ジメチル-8-キノリノラート)アルミニウム、

【0047】ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(フェノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(2-メチルフェノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(3-メチルフェノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(4-メチルフェノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(2-フェニルフェノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(3-フェニルフェノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(4-フェニルフェノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(2,3-ジメチルフェノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(2,6-ジメチルフェノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(3,4-ジメチルフェノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(3,5-ジメチルフェノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(2,6-ジフェニルフェノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(2,4,6-トリフェニルフェノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(2,4,6-トリメチルフェノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(2,4,5,6-テトラメチルフェノラート)アルミ

(15)

27

ニウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(1-ナフトラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(2-ナフトラート)アルミニウム、ビス(2, 4-ジメチル-8-キノリノラート)(2-フェニルフェノラート)アルミニウム、ビス(2, 4-ジメチル-8-キノリノラート)(3-フェニルフェノラート)アルミニウム、ビス(2, 4-ジメチル-8-キノリノラート)(4-フェニルフェノラート)アルミニウム、ビス(2, 4-ジメチル-8-キノリノラート)(3, 5-ジメチルフェノラート)アルミニウム、ビス(2, 4-ジメチル-8-キノリノラート)(3, 5-ジ-tert-ブチルフェノラート)アルミニウム、

【0048】ビス(2-メチル-8-キノリノラート)アルミニウム- $\mu$ -オキソ-ビス(2-メチル-8-キノリノラート)アルミニウム、ビス(2, 4-ジメチル-8-キノリノラート)アルミニウム- $\mu$ -オキソ-ビス(2, 4-ジメチル-8-キノリノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-4-エチル-8-キノリノラート)アルミニウム- $\mu$ -オキソ-ビス(2-メチル-4-エチル-8-キノリノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-4-メトキシ-8-キノリノラート)アルミニウム- $\mu$ -オキソ-ビス(2-メチル-4-メトキシ-8-キノリノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-5-シアノ-8-キノリノラート)アルミニウム- $\mu$ -オキソ-ビス(2-メチル-5-シアノ-8-キノリノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-5-トリフルオロメチル-8-キノリノラート)アルミニウム- $\mu$ -オキソ-ビス(2-メチル-5-トリフルオロメチル-8-キノリノラート)アルミニウムなどを挙げることができる。勿論、発光性有機金属錯体は、単独で使用してもよく、あるいは複数併用してもよい。

【0049】電子注入輸送層5は、陰極からの電子の注入を容易にする機能、そして注入された電子を輸送する機能を有する化合物を含有する層である。電子注入輸送層に使用される電子注入輸送機能を有する化合物としては、例えば、有機金属錯体〔例えば、トリス(8-キノリノラート)アルミニウム、ビス(10-ベンゾ[h]キノリノラート)ベリリウム〕、オキサジアゾール誘導体、トリアゾール誘導体、トリアジン誘導体、ペリレン誘導体、キノリン誘導体、キノキサリン誘導体、ジフェニルキノン誘導体、ニトロ置換フルオレノン誘導体、チオピランジオキサイド誘導体などを挙げることができる。尚、電子注入輸送機能を有する化合物は、単独で使用してもよく、あるいは複数併用してもよい。

【0050】陰極6としては、比較的仕事関数の小さい金属、合金または電気電導性化合物を電極物質として使用することが好ましい。陰極に使用する電極物質としては、例えば、リチウム、リチウム-インジウム合金、ナトリウム、ナトリウム-カリウム合金、カルシウム、マ

28

グネシウム、マグネシウム-銀合金、マグネシウム-インジウム合金、インジウム、ルテニウム、チタニウム、マンガン、イットリウム、アルミニウム、アルミニウム-リチウム合金、アルミニウム-カルシウム合金、アルミニウム-マグネシウム合金、グラファイト薄膜等を挙げることができる。これらの電極物質は、単独で使用してもよく、あるいは複数併用してもよい。陰極は、これらの電極物質を、例えば、蒸着法、スパッタリング法、イオン化蒸着法、イオンプレーティング法、クラスターイオンビーム法等の方法により、電子注入輸送層の上に形成することができる。また、陰極は一層構造であってもよく、あるいは多層構造であってもよい。尚、陰極のシート電気抵抗は、数百 $\Omega/\square$ 以下に設定するのが好ましい。陰極の厚みは、使用する電極物質の材料にもよるが、一般に、5~1000nm程度、より好ましくは、10~500nm程度に設定する。尚、有機電界発光素子の発光を効率よく取り出すために、陽極または陰極の少なくとも一方の電極が、透明ないし半透明であることが好ましく、一般に、発光光の透過率が70%以上となるように陽極の材料、厚みを設定することがより好ましい。

【0051】また、本発明の有機電界発光素子においては、その少なくとも一層中に、一重項酸素クエンチャーが含有されていてもよい。一重項酸素クエンチャーとしては、特に限定するものではなく、例えば、ルブレン、ニッケル錯体、ジフェニルイソベンゾフランなどが挙げられ、特に好ましくは、ルブレンである。一重項酸素クエンチャーが含有されている層としては、特に限定するものではないが、好ましくは、発光層または正孔注入輸送層であり、より好ましくは、正孔注入輸送層である。尚、例えば、正孔注入輸送層に一重項酸素クエンチャーを含有させる場合、正孔注入輸送層中に均一に含有させてもよく、正孔注入輸送層と隣接する層(例えば、発光層、発光機能を有する電子注入輸送層)の近傍に含有させてもよい。一重項酸素クエンチャーの含有量としては、含有される層(例えば、正孔注入輸送層)を構成する全体量の0.01~50重量%、好ましくは、0.05~30重量%、より好ましくは、0.1~20重量%である。

【0052】正孔注入輸送層、発光層、電子注入輸送層の形成方法に関しては、特に限定するものではなく、例えば、真空蒸着法、イオン化蒸着法、溶液塗布法(例えば、スピンコート法、キャスト法、ディップコート法、バーコート法、ロールコート法、ラングミュア・ブロゼット法など)により薄膜を形成することにより作製することができる。真空蒸着法により、各層を形成する場合、真空蒸着の条件は、特に限定するものではないが、 $10^{-5}$  Torr 程度以下の真空下で、50~400℃程度のボート温度(蒸着源温度)、-50~300℃程度の基板温度で、0.005~50nm/sec 程度の蒸着速

度で実施することが好ましい。この場合、正孔注入輸送層、発光層、電子注入輸送層等の各層は、真空下で、連続して形成することにより、諸特性に一層優れた有機電界発光素子を製造することができる。真空蒸着法により、正孔注入輸送層、発光層、電子注入輸送層等の各層を、複数の化合物を用いて形成する場合、化合物を入れた各ボートを個別に温度制御して、共蒸着することが好ましい。

【0053】溶液塗布法により、各層を形成する場合、各層を形成する成分あるいはその成分とバインダー樹脂等を、溶媒に溶解、または分散させて塗布液とする。正孔注入輸送層、発光層、電子注入輸送層の各層に使用しうるバインダー樹脂としては、例えば、ポリ-N-ビニルカルバゾール、ポリアリレート、ポリスチレン、ポリエステル、ポリシロキサン、ポリメチルアクリレート、ポリメチルメタクリレート、ポリエーテル、ポリカーボネート、ポリアミド、ポリイミド、ポリアミドイミド、ポリパラキシレン、ポリエチレン、ポリフェニレンオキサイド、ポリエーテルスルフォン、ポリアニリンおよびその誘導体、ポリチオフェンおよびその誘導体、ポリフェニレンビニレンおよびその誘導体、ポリフルオレンおよびその誘導体、ポリチエニレンビニレンおよびその誘導体等の高分子化合物が挙げられる。バインダー樹脂は、単独で使用してもよく、あるいは複数併用してもよい。

【0054】溶液塗布法により、各層を形成する場合、各層を形成する成分あるいはその成分とバインダー樹脂等を、適当な有機溶媒（例えば、ヘキサン、オクタン、デカン、トルエン、キシレン、エチルベンゼン、1-メチルナフタレン等の炭化水素系溶媒、例えば、アセトン、メチルエチルケトン、メチルイソブチルケトン、シクロヘキサノン等のケトン系溶媒、例えば、ジクロロメタン、クロロホルム、テトラクロロメタン、ジクロロエタン、トリクロロエタン、テトラクロロエタン、クロロベンゼン、ジクロロベンゼン、クロロトルエン等のハロゲン化炭化水素系溶媒、例えば、酢酸エチル、酢酸ブチル、酢酸アミル等のエステル系溶媒、例えば、メタノール、プロパノール、ブタノール、ペンタノール、ヘキサノール、シクロヘキサノール、メチルセロソルブ、エチルセロソルブ、エチレングリコール等のアルコール系溶媒、例えば、ジブチルエーテル、テトラヒドロフラン、ジオキサン、アニソール等のエーテル系溶媒、例えば、N,N-ジメチルホルムアミド、N,N-ジメチルアセトアミド、1-メチル-2-ピロリドン、1,3-ジメチル-2-イミダゾリジノン、ジメチルスルフォキサイド等の極性溶媒）および/または水に溶解、または分散させて塗布液とし、各種の塗布法により、薄膜を形成することができる。

【0055】尚、分散する方法としては、特に限定するものではないが、例えば、ボールミル、サンドミル、ペ

イントシェーカー、アトライター、ホモジナイザー等を用いて微粒子状に分散することができる。塗布液の濃度に関しては、特に限定するものではなく、実施する塗布法により、所望の厚みを作製するに適した濃度範囲に設定することができ、一般には、0.1~50重量%程度、好ましくは、1~30重量%程度の溶液濃度である。尚、バインダー樹脂を使用する場合、その使用量に関しては、特に限定するものではないが、一般には、各層を形成する成分に対して（一層型の素子を形成する場合には、各成分の総量に対して）、5~99.9重量%程度、好ましくは、10~99重量%程度、より好ましくは、15~90重量%程度に設定する。

【0056】正孔注入輸送層、発光層、電子注入輸送層の膜厚に関しては、特に限定するものではないが、一般に、5nm~5μm程度に設定することが好ましい。尚、作製した素子に対し、酸素や水分等との接触を防止する目的で、保護層（封止層）を設けたり、また素子を、例えば、パラフィン、流動パラフィン、シリコンオイル、フルオロカーボン油、ゼオライト含有フルオロカーボン油などの不活性物質中に封入して保護することができる。保護層に使用する材料としては、例えば、有機高分子材料（例えば、フッ素化樹脂、エポキシ樹脂、シリコン樹脂、エポキシシリコン樹脂、ポリスチレン、ポリエステル、ポリカーボネート、ポリアミド、ポリイミド、ポリアミドイミド、ポリパラキシレン、ポリエチレン、ポリフェニレンオキサイド）、無機材料（例えば、ダイヤモンド薄膜、アモルファスシリカ、電気絶縁性ガラス、金属酸化物、金属窒化物、金属炭素化物、金属硫化物）、さらには光硬化性樹脂などを挙げることができる。保護層に使用する材料は、単独で使用してもよく、あるいは複数併用してもよい。保護層は、一層構造であってもよく、また多層構造であってもよい。

【0057】また、電極に保護膜として、例えば、金属酸化膜（例えば、酸化アルミニウム膜）、金属フッ化膜を設けることもできる。また、例えば、陽極の表面に、例えば、有機リン化合物、ポリシラン、芳香族アミン誘導体、フタロシアニン誘導体から成る界面層（中間層）を設けることもできる。さらに、電極、例えば、陽極はその表面を、例えば、酸、アンモニア/過酸化水素、あるいはプラズマで処理して使用することもできる。

【0058】本発明の有機電界発光素子は、一般に、直流駆動型の素子として使用されるが、パルス駆動型または交流駆動型の素子としても使用することができる。尚、印加電圧は、一般に、2~30V程度である。本発明の有機電界発光素子は、例えば、パネル型光源、各種の発光素子、各種の表示素子、各種の標識、各種のセンサーなどに使用することができる。

【0059】

【実施例】以下、実施例により本発明をさらに詳細に説明するが、勿論、本発明はこれらに限定されるものでは



(17)

31

ない。

## 実施例1

厚さ200nmのITO透明電極(陽極)を有するガラス基板を、中性洗剤、アセトン、エタノールを用いて超音波洗浄した。その基板を窒素ガスを用いて乾燥し、さらにUV/オゾン洗浄した後、蒸着装置の基板ホルダーに固定した後、蒸着槽を $3 \times 10^{-6}$  Torr に減圧した。まず、ITO透明電極上に、2-[N, N'-ジ(3'-メチルフェニル)アミノ]-9, 9-ジフェニルフルオレン(例示化合物番号A-14の化合物)を、蒸着速度0.2nm/secで75nmの厚さに蒸着し、正孔注入輸送層とした。次いで、その上に、トリス(8-キノリノラート)アルミニウムを、蒸着速度0.2nm/secで50nmの厚さに蒸着し、電子注入輸送層を兼ねた発光層とした。さらにその上に、マグネシウムと銀を蒸着速度0.2nm/secで200nmの厚さに共蒸着(重量比10:1)して陰極とし、有機電界発光素子を作製した。尚、蒸着は、蒸着槽の減圧状態を保ったまま実施した。作製した有機電界発光素子に直流電圧を印加し、乾燥雰囲気下、10mA/cm<sup>2</sup>の定電流密度で連続駆動させた。初期には、6.5V、輝度420cd/m<sup>2</sup>の緑色の発光が確認された。輝度の半減期は530時間であった。

## 【0060】実施例2~27

実施例1において、正孔注入輸送層の形成に際して、例示化合物番号A-14の化合物を使用する代わりに、例示化合物番号A-1の化合物(実施例2)、例示化合物番号A-3の化合物(実施例3)、例示化合物番号A-6の化合物(実施例4)、例示化合物番号A-8の化合物(実施例5)、例示化合物番号A-13の化合物(実施例6)、例示化合物番号A-16の化合物(実施例7)、例示化合物番号A-17の化合物(実施例8)、例示化合物番号A-21の化合物(実施例9)、例示化

32

合物番号A-28の化合物(実施例10)、例示化合物番号A-33の化合物(実施例11)、例示化合物番号A-38の化合物(実施例12)、例示化合物番号A-43の化合物(実施例13)、例示化合物番号A-51の化合物(実施例14)、例示化合物番号A-54の化合物(実施例15)、例示化合物番号A-60の化合物(実施例16)、例示化合物番号A-65の化合物(実施例17)、例示化合物番号A-69の化合物(実施例18)、例示化合物番号A-77の化合物(実施例19)、例示化合物番号A-80の化合物(実施例20)、例示化合物番号A-86の化合物(実施例21)、例示化合物番号A-88の化合物(実施例22)、例示化合物番号A-93の化合物(実施例23)、例示化合物番号A-94の化合物(実施例24)、例示化合物番号A-97の化合物(実施例25)、例示化合物番号A-107の化合物(実施例26)、例示化合物番号A-113の化合物(実施例27)を使用した以外は、実施例1に記載の方法により有機電界発光素子を作製した。各素子からは緑色の発光が確認された。さらにその特性を調べ、結果を第1表(表1、表2)に示した。

## 【0061】比較例1~2

実施例1において、正孔注入輸送層の形成に際して、例示化合物番号A-14の化合物を使用する代わりに、4, 4'-ビス[N-フェニル-N-(3'-メチルフェニル)アミノ]ビフェニル(比較例1)、1, 1'-ビス[4'-[N, N'-ジ(4'-メチルフェニル)アミノ]フェニル]シクロヘキサン(比較例2)を使用した以外は、実施例1に記載の方法により有機電界発光素子を作製した。各素子からは緑色の発光が確認された。さらにその特性を調べ、結果を第1表に示した。

## 【0062】

## 【表1】

(18)

33

34

第1表

有機電界 発光素子	初期特性		半減期 (h r)
	輝度 (c d/m <sup>2</sup> )	電圧 (V)	
実施例 2	410	6.6	520
実施例 3	420	6.5	540
実施例 4	420	6.4	530
実施例 5	410	6.5	520
実施例 6	410	6.5	530
実施例 7	420	6.7	540
実施例 8	420	6.5	540
実施例 9	420	6.4	520
実施例 10	430	6.5	530
実施例 11	420	6.8	510
実施例 12	410	6.5	520
実施例 13	420	6.4	520
実施例 14	410	6.6	510
実施例 15	430	6.5	540
実施例 16	440	6.7	530
実施例 17	420	6.5	540
実施例 18	430	6.5	530

【0063】

\* \* 【表2】  
第1表 (続き)

有機電界 発光素子	初期特性		半減期 (h r)
	輝度 (c d/m <sup>2</sup> )	電圧 (V)	
実施例 19	410	6.4	530
実施例 20	420	6.5	520
実施例 21	430	6.6	540
実施例 22	440	6.5	520
実施例 23	420	6.6	530
実施例 24	420	6.5	520
実施例 25	410	6.4	540
実施例 26	420	6.5	530
実施例 27	430	6.7	520
比較例 1	300	5.2	120
比較例 2	360	8.5	3

【0064】実施例28

厚さ200nmのITO透明電極(陽極)を有するガラス基板を、中性洗剤、アセトン、エタノールを用いて超音波洗浄した。その基板を窒素ガスを用いて乾燥し、さらにUV/オゾン洗浄した後、蒸着装置の基板ホルダーに固定した後、蒸着槽を $3 \times 10^{-6}$  Torr に減圧した。

まず、ITO透明電極上に、ポリ(チオフェン-2,5-ジイル)を蒸着速度0.1nm/secで、20nmの厚さに蒸着し、第一正孔注入輸送層とした。次いで、例示化合物番号A-14の化合物を、蒸着速度0.2nm/secで55nmの厚さに蒸着し、第二正孔注入輸送層とした。次いで、その上に、トリス(8-キノリノラー

(19)

35

ト) アルミニウムを、蒸着速度  $0.2 \text{ nm/sec}$  で  $50 \text{ nm}$  の厚さに蒸着し、電子注入輸送層を兼ねた発光層とした。さらにその上に、マグネシウムと銀を蒸着速度  $0.2 \text{ nm/sec}$  で  $200 \text{ nm}$  の厚さに共蒸着 (重量比  $10:1$ ) して陰極とし、有機電界発光素子を作製した。尚、蒸着は、蒸着槽の減圧状態を保ったまま実施した。作製した有機電界発光素子に直流電圧を印加し、乾燥雰囲気下、 $10 \text{ mA/cm}^2$  の定電流密度で連続駆動させた。初期には、 $6.4 \text{ V}$ 、輝度  $410 \text{ cd/m}^2$  の緑色の発光が確認された。輝度の半減期は  $1400$  時間であった。

## 【0065】実施例29

厚さ  $200 \text{ nm}$  のITO透明電極 (陽極) を有するガラス基板を、中性洗剤、アセトン、エタノールを用いて超音波洗浄した。その基板を窒素ガスを用いて乾燥し、さらにUV/オゾン洗浄した後、蒸着装置の基板ホルダーに固定した後、蒸着槽を  $3 \times 10^{-6} \text{ Torr}$  に減圧した。まず、ITO透明電極上に、4, 4', 4"-トリス [N-(3"-メチルフェニル)-N-フェニルアミノ] トリフェニルアミンを蒸着速度  $0.1 \text{ nm/sec}$  で、 $50 \text{ nm}$  の厚さに蒸着し、第一正孔注入輸送層とした。次いで、例示化合物番号A-54の化合物とルブレンを、異なる蒸着源から、蒸着速度  $0.2 \text{ nm/sec}$  で  $20 \text{ nm}$  の厚さに共蒸着 (重量比  $10:1$ ) し、第二正孔注入輸送層を兼ねた発光層とした。次いで、その上に、トリス (8-キノリノラート) アルミニウムを蒸着速度  $0.2 \text{ nm/sec}$  で  $50 \text{ nm}$  の厚さに蒸着し、電子注入輸送層とした。さらにその上に、マグネシウムと銀を蒸着速度  $0.2 \text{ nm/sec}$  で  $200 \text{ nm}$  の厚さに共蒸着 (重量比  $10:1$ ) して陰極とし、有機電界発光素子を作製した。尚、蒸着は、蒸着槽の減圧状態を保ったまま実施した。作製した有機電界発光素子に直流電圧を印加し、乾燥雰囲気下、 $10 \text{ mA/cm}^2$  の定電流密度で連続駆動させた。初期には、 $6.2 \text{ V}$ 、輝度  $500 \text{ cd/m}^2$  の黄色の発光が確認された。輝度の半減期は  $1500$  時間であった。

## 【0066】実施例30

厚さ  $200 \text{ nm}$  のITO透明電極 (陽極) を有するガラス基板を、中性洗剤、アセトン、エタノールを用いて超音波洗浄した。その基板を窒素ガスを用いて乾燥し、さらにUV/オゾン洗浄した後、蒸着装置の基板ホルダーに固定した後、蒸着槽を  $3 \times 10^{-6} \text{ Torr}$  に減圧した。まず、ITO透明電極上に、ポリ (チオフェン-2, 5-ジイル) を蒸着速度  $0.1 \text{ nm/sec}$  で、 $20 \text{ nm}$  の厚さに蒸着し、第一正孔注入輸送層とした。蒸着槽を大気圧下に戻した後、再び蒸着槽を  $3 \times 10^{-6} \text{ Torr}$  に減圧した。次いで、例示化合物番号A-14の化合物とルブレンを、異なる蒸着源から、蒸着速度  $0.2 \text{ nm/sec}$  で  $55 \text{ nm}$  の厚さに共蒸着 (重量比  $10:1$ ) し、第二正孔注入輸送層を兼ねた発光層とした。減圧状態を保つ

36

たまま、次いで、その上に、トリス (8-キノリノラート) アルミニウムを蒸着速度  $0.2 \text{ nm/sec}$  で  $50 \text{ nm}$  の厚さに蒸着し、電子注入輸送層とした。減圧状態を保ったまま、さらにその上に、マグネシウムと銀を、蒸着速度  $0.2 \text{ nm/sec}$  で  $200 \text{ nm}$  の厚さに共蒸着 (重量比  $10:1$ ) して陰極とし、有機電界発光素子を作製した。作製した有機電界発光素子に直流電圧を印加し、乾燥雰囲気下、 $10 \text{ mA/cm}^2$  の定電流密度で連続駆動させた。初期には、 $6.2 \text{ V}$ 、輝度  $450 \text{ cd/m}^2$  の黄色の発光が確認された。輝度の半減期は  $2000$  時間であった。

## 【0067】実施例31

厚さ  $200 \text{ nm}$  のITO透明電極 (陽極) を有するガラス基板を、中性洗剤、アセトン、エタノールを用いて超音波洗浄した。その基板を窒素ガスを用いて乾燥し、さらにUV/オゾン洗浄した後、蒸着装置の基板ホルダーに固定した後、蒸着槽を  $3 \times 10^{-6} \text{ Torr}$  に減圧した。まず、ITO透明電極上に、2, 7-ビス [N, N'-ジ (3'-メチルフェニル) アミノ] -9, 9-ジフェニルフルオレン (例示化合物番号B-14の化合物) を、蒸着速度  $0.2 \text{ nm/sec}$  で  $75 \text{ nm}$  の厚さに蒸着し、正孔注入輸送層とした。次いで、その上に、トリス (8-キノリノラート) アルミニウムを、蒸着速度  $0.2 \text{ nm/sec}$  で  $50 \text{ nm}$  の厚さに蒸着し、電子注入輸送層を兼ねた発光層とした。さらにその上に、マグネシウムと銀を蒸着速度  $0.2 \text{ nm/sec}$  で  $200 \text{ nm}$  の厚さに共蒸着 (重量比  $10:1$ ) して陰極とし、有機電界発光素子を作製した。尚、蒸着は、蒸着槽の減圧状態を保ったまま実施した。作製した有機電界発光素子に直流電圧を印加し、乾燥雰囲気下、 $10 \text{ mA/cm}^2$  の定電流密度で連続駆動させた。初期には、 $6.5 \text{ V}$ 、輝度  $430 \text{ cd/m}^2$  の緑色の発光が確認された。輝度の半減期は  $550$  時間であった。

## 【0068】実施例32~57

実施例31において、正孔注入輸送層の形成に際して、例示化合物番号B-14の化合物を使用する代わりに、例示化合物番号B-1の化合物 (実施例32)、例示化合物番号B-3の化合物 (実施例33)、例示化合物番号B-6の化合物 (実施例34)、例示化合物番号B-13の化合物 (実施例35)、例示化合物番号B-16の化合物 (実施例36)、例示化合物番号B-17の化合物 (実施例37)、例示化合物番号B-21の化合物 (実施例38)、例示化合物番号B-26の化合物 (実施例39)、例示化合物番号B-32の化合物 (実施例40)、例示化合物番号B-37の化合物 (実施例41)、例示化合物番号B-43の化合物 (実施例42)、例示化合物番号B-52の化合物 (実施例43)、例示化合物番号B-65の化合物 (実施例44)、例示化合物番号B-72の化合物 (実施例45)、例示化合物番号B-75の化合物 (実施例4

(20)

37

- 6)、例示化合物番号B-81の化合物(実施例4  
 7)、例示化合物番号B-87の化合物(実施例4  
 8)、例示化合物番号B-91の化合物(実施例4  
 9)、例示化合物番号B-94の化合物(実施例5  
 0)、例示化合物番号B-100の化合物(実施例5  
 1)、例示化合物番号B-102の化合物(実施例5  
 2)、例示化合物番号B-107の化合物(実施例5  
 3)、例示化合物番号B-108の化合物(実施例5  
 4)、例示化合物番号B-111の化合物(実施例5 \*

38

- \* 5)、例示化合物番号B-121の化合物(実施例5  
 6)、例示化合物番号B-127の化合物(実施例5  
 7)を使用した以外は、実施例31に記載の方法により  
 有機電界発光素子を作製した。各素子からは緑色の発光  
 が確認された。さらにその特性を調べ、結果を第2表  
 (表3、表4)に示した。

【0069】

【表3】

第2表

有機電界 発光素子	初期特性		半減期 (h r)
	輝度 ( $\text{cd}/\text{m}^2$ )	電圧 (V)	
実施例32	440	6.6	580
実施例33	430	6.5	540
実施例34	450	6.4	550
実施例35	420	6.5	570
実施例36	440	6.7	560
実施例37	450	6.5	540
実施例38	440	6.4	560
実施例39	430	6.5	550
実施例40	440	6.8	540
実施例41	450	6.5	530
実施例42	420	6.4	520
実施例43	450	6.6	550
実施例44	430	6.5	540
実施例45	440	6.7	560
実施例46	450	6.5	540
実施例47	440	6.4	530
実施例48	460	6.5	570

【0070】

【表4】

第2表 (続き)

有機電界 発光素子	初期特性		半減期 (h r)
	輝度 ( $\text{cd}/\text{m}^2$ )	電圧 (V)	
実施例49	450	6.5	550
実施例50	430	6.6	540
実施例51	440	6.5	550
実施例52	440	6.6	560
実施例53	460	6.5	540
実施例54	430	6.4	550
実施例55	460	6.5	560
実施例56	440	6.7	550
実施例57	430	6.5	540

## 【0071】実施例58

厚さ200nmのITO透明電極(陽極)を有するガラス基板を、中性洗剤、アセトン、エタノールを用いて超音波洗浄した。その基板を窒素ガスを用いて乾燥し、さらにUV/オゾン洗浄した後、蒸着装置の基板ホルダーに固定した後、蒸着槽を $3 \times 10^{-6}$  Torrに減圧した。まず、ITO透明電極上に、ポリ(チオフェン-2, 5-ジイル)を蒸着速度0.1nm/secで、20nmの厚さに蒸着し、第一正孔注入輸送層とした。次いで、例示化合物番号B-14の化合物を、蒸着速度0.2nm/secで55nmの厚さに蒸着し、第二正孔注入輸送層とした。次いで、その上に、トリス(8-キノリノラート)アルミニウムを、蒸着速度0.2nm/secで50nmの厚さに蒸着し、電子注入輸送層を兼ねた発光層とした。さらにその上に、マグネシウムと銀を蒸着速度0.2nm/secで200nmの厚さに共蒸着(重量比10:1)して陰極とし、有機電界発光素子を作製した。尚、蒸着は、蒸着槽の減圧状態を保ったまま実施した。作製した有機電界発光素子に直流電圧を印加し、乾燥雰囲気下、 $10\text{mA}/\text{cm}^2$ の定電流密度で連続駆動させた。初期には、6.4V、輝度 $400\text{cd}/\text{m}^2$ の緑色の発光が確認された。輝度の半減期は1400時間であった。

## 【0072】実施例59

厚さ200nmのITO透明電極(陽極)を有するガラス基板を、中性洗剤、アセトン、エタノールを用いて超音波洗浄した。その基板を窒素ガスを用いて乾燥し、さらにUV/オゾン洗浄した後、蒸着装置の基板ホルダーに固定した後、蒸着槽を $3 \times 10^{-6}$  Torrに減圧した。まず、ITO透明電極上に、4, 4', 4"-トリス[N-(3"-メチルフェニル)-N-フェニルアミノ]トリフェニルアミンを蒸着速度0.1nm/secで、50nmの厚さに蒸着し、第一正孔注入輸送層とした。次いで、例示化合物番号B-14の化合物とルブレ

ンを、異なる蒸着源から、蒸着速度0.2nm/secで20nmの厚さに共蒸着(重量比10:1)し、第二正孔注入輸送層を兼ねた発光層とした。次いで、その上に、トリス(8-キノリノラート)アルミニウムを蒸着速度0.2nm/secで50nmの厚さに蒸着し、電子注入輸送層とした。さらにその上に、マグネシウムと銀を蒸着速度0.2nm/secで200nmの厚さに共蒸着(重量比10:1)して陰極とし、有機電界発光素子を作製した。尚、蒸着は、蒸着槽の減圧状態を保ったまま実施した。作製した有機電界発光素子に直流電圧を印加し、乾燥雰囲気下、 $10\text{mA}/\text{cm}^2$ の定電流密度で連続駆動させた。初期には、6.4V、輝度 $550\text{cd}/\text{m}^2$ の黄色の発光が確認された。輝度の半減期は1700時間であった。

## 【0073】実施例60

厚さ200nmのITO透明電極(陽極)を有するガラス基板を、中性洗剤、アセトン、エタノールを用いて超音波洗浄した。その基板を窒素ガスを用いて乾燥し、さらにUV/オゾン洗浄した後、蒸着装置の基板ホルダーに固定した後、蒸着槽を $3 \times 10^{-6}$  Torrに減圧した。まず、ITO透明電極上に、ポリ(チオフェン-2, 5-ジイル)を蒸着速度0.1nm/secで、20nmの厚さに蒸着し、第一正孔注入輸送層とした。蒸着槽を大気圧下に戻した後、再び蒸着槽を $3 \times 10^{-6}$  Torrに減圧した。次いで、例示化合物番号B-14の化合物とルブレンを、異なる蒸着源から、蒸着速度0.2nm/secで55nmの厚さに共蒸着(重量比10:1)し、第二正孔注入輸送層を兼ねた発光層とした。減圧状態を保ったまま、次いで、その上に、トリス(8-キノリノラート)アルミニウムを蒸着速度0.2nm/secで50nmの厚さに蒸着し、電子注入輸送層とした。減圧状態を保ったまま、さらにその上に、マグネシウムと銀を、蒸着速度0.2nm/secで200nmの厚さに共蒸着(重量比10:1)して陰極とし、有機電界発光素子を作

(22)

41

作製した。作製した有機電界発光素子に直流電圧を印加し、乾燥雰囲気下、 $10\text{ mA/cm}^2$ の定電流密度で連続駆動させた。初期には、 $6.2\text{ V}$ 、輝度 $450\text{ cd/m}^2$ の黄色の発光が確認された。輝度の半減期は $1800$ 時間であった。

#### 【0074】実施例61

厚さ $200\text{ nm}$ のITO透明電極（陽極）を有するガラス基板を、中性洗剤、アセトン、エタノールを用いて超音波洗浄した。その基板を窒素ガスを用いて乾燥し、さらにUV/オゾン洗浄した後、蒸着装置の基板ホルダーに固定した後、蒸着槽を $3 \times 10^{-6}\text{ Torr}$ に減圧した。まず、ITO透明電極上に、例示化合物番号A-14の化合物を、蒸着速度 $0.2\text{ nm/sec}$ で $55\text{ nm}$ の厚さに蒸着し、正孔注入輸送層とした。次いで、その上に、トリス（8-キノリノラート）アルミニウムと例示化合物番号A-14の化合物を、異なる蒸着源から、蒸着速度 $0.2\text{ nm/sec}$ で $40\text{ nm}$ の厚さに共蒸着（重量比 $10:1$ ）し、発光層とした。さらに、トリス（8-キノリノラート）アルミニウムを、蒸着速度 $0.2\text{ nm/sec}$ で $30\text{ nm}$ の厚さに蒸着し、電子注入輸送層とした。さらにその上に、マグネシウムと銀を蒸着速度 $0.2\text{ nm/sec}$ で $200\text{ nm}$ の厚さに共蒸着（重量比 $10:1$ ）して陰極とし、有機電界発光素子を作製した。尚、蒸着は、蒸着槽の減圧状態を保ったまま実施した。作製した有機電界発光素子に直流電圧を印加し、乾燥雰囲気下、 $10\text{ mA/cm}^2$ の定電流密度で連続駆動させた。初期には、 $6.2\text{ V}$ 、輝度 $460\text{ cd/m}^2$ の緑色の発光が確認された。輝度の半減期は $1800$ 時間であった。

#### 【0075】実施例62

厚さ $200\text{ nm}$ のITO透明電極（陽極）を有するガラス基板を、中性洗剤、アセトン、エタノールを用いて超音波洗浄した。その基板を窒素ガスを用いて乾燥し、さらにUV/オゾン洗浄した。次に、ITO透明電極上に、ポリカーボネート（重量平均分子量 $50000$ ）、と例示化合物番号B-14の化合物を、重量比 $100:50$ の割合で含有する3重量%ジクロロエタン溶液を用いて、ディップコート法により、 $40\text{ nm}$ の正孔注入輸送層とした。次に、この正孔注入輸送層を有するガラス基板を、蒸着装置の基板ホルダーに固定した後、蒸着槽を $3 \times 10^{-6}\text{ Torr}$ に減圧した。次いで、その上に、トリス（8-キノリノラート）アルミニウムを、蒸着速度 $0.2\text{ nm/sec}$ で $50\text{ nm}$ の厚さに蒸着し、電子注入輸送層を兼ねた発光層とした。さらに、発光層の上に、マグネシウムと銀を、蒸着速度 $0.2\text{ nm/sec}$ で $200\text{ nm}$ の厚さに共蒸着（重量比 $10:1$ ）して陰極とし、有機電界発光素子を作製した。作製した有機電界発光素子に、乾燥雰囲気下、 $10\text{ V}$ の直流電圧を印加した

42

ところ、 $95\text{ mA/cm}^2$ の電流が流れた。輝度 $1030\text{ cd/m}^2$ の緑色の発光が確認された。輝度の半減期は $150$ 時間であった。

#### 【0076】実施例63

厚さ $200\text{ nm}$ のITO透明電極（陽極）を有するガラス基板を、中性洗剤、アセトン、エタノールを用いて超音波洗浄した。その基板を窒素ガスを用いて乾燥し、さらにUV/オゾン洗浄した。次に、ITO透明電極上に、ポリメチルメタクリレート（重量平均分子量 $25000$ ）、例示化合物番号B-14の化合物、トリス（8-キノリノラート）アルミニウムを、それぞれ重量比 $100:50:0.5$ の割合で含有する3重量%ジクロロエタン溶液を用いて、ディップコート法により、 $100\text{ nm}$ の発光層を形成した。次に、この発光層を有するガラス基板を、蒸着装置の基板ホルダーに固定した後、蒸着槽を $3 \times 10^{-6}\text{ Torr}$ に減圧した。さらに、発光層の上に、マグネシウムと銀を、蒸着速度 $0.2\text{ nm/sec}$ で $200\text{ nm}$ の厚さに共蒸着（重量比 $10:1$ ）して陰極とし、有機電界発光素子を作製した。作製した有機電界発光素子に、乾燥雰囲気下、 $15\text{ V}$ の直流電圧を印加したところ、 $80\text{ mA/cm}^2$ の電流が流れた。輝度 $530\text{ cd/m}^2$ の緑色の発光が確認された。輝度の半減期は $200$ 時間であった。

#### 【0077】

【発明の効果】本発明により、発光寿命が長く、耐久性に優れた有機電界発光素子を提供することが可能になった。

#### 【図面の簡単な説明】

【図1】有機電界発光素子の一例の概略構造図である。

【図2】有機電界発光素子の一例の概略構造図である。

【図3】有機電界発光素子の一例の概略構造図である。

【図4】有機電界発光素子の一例の概略構造図である。

【図5】有機電界発光素子の一例の概略構造図である。

【図6】有機電界発光素子の一例の概略構造図である。

【図7】有機電界発光素子の一例の概略構造図である。

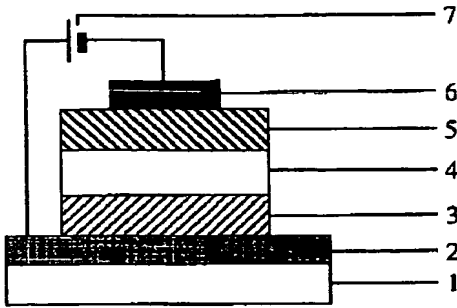
【図8】有機電界発光素子の一例の概略構造図である。

#### 【符号の説明】

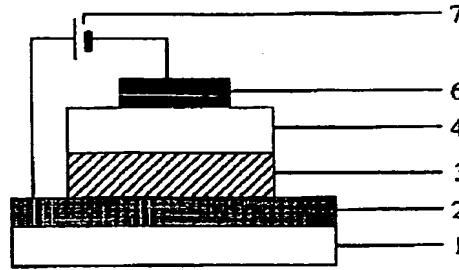
- 1 : 基板
- 2 : 陽極
- 3 : 正孔注入輸送層
- 3a : 正孔注入輸送成分
- 4 : 発光層
- 4a : 発光成分
- 5 : 電子注入輸送層
- 5' : 電子注入輸送層
- 5a : 電子注入輸送成分
- 6 : 陰極
- 7 : 電源

(23)

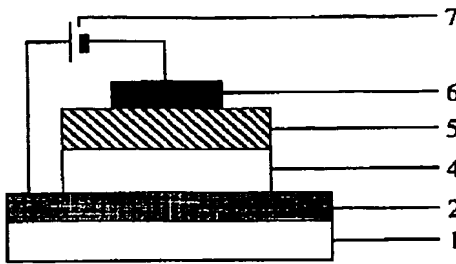
【図1】



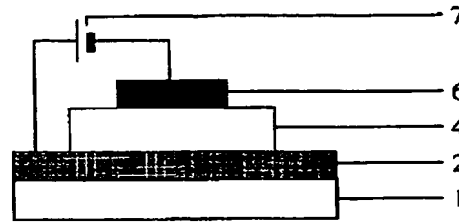
【図2】



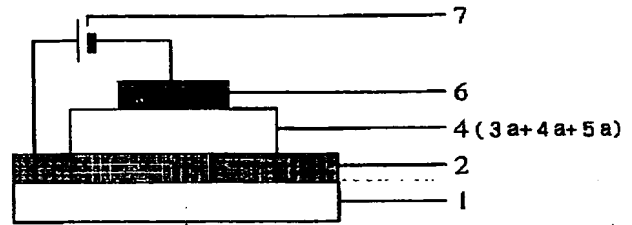
【図3】



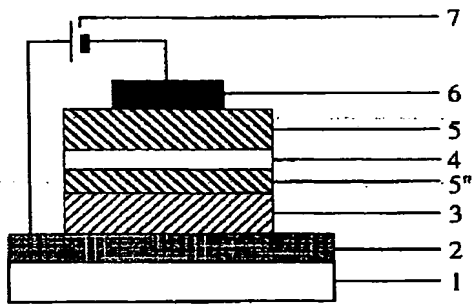
【図4】



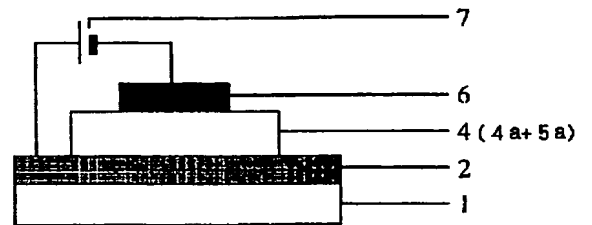
【図6】



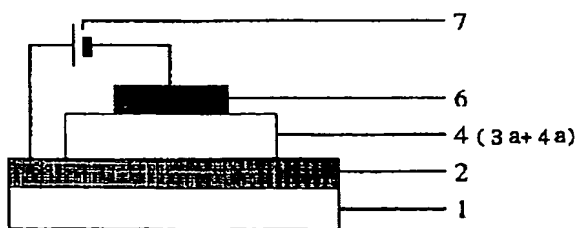
【図5】



【図8】



【図7】



**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning  
Operations and is not part of the Official Record**

**BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ **BLACK BORDERS**
- ☐ **IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES**
- ☐ **FADED TEXT OR DRAWING**
- ☐ **BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING**
- ☐ **SKEWED/SLANTED IMAGES**
- ☒ **COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS**
- ☒ **GRAY SCALE DOCUMENTS**
- ☒ **LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT**
- ☐ **REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY**
- ☐ **OTHER: \_\_\_\_\_**

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.**